

Tesis Doctoral

# Técnica de error de foco para microscopía de expansión y recuperación térmica (ThERM)

Domené, Esteban A.

2013

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:

Domené, Esteban A.. (2013). Técnica de error de foco para microscopía de expansión y recuperación térmica (ThERM). Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.

Cita tipo Chicago:

Domené, Esteban A.. "Técnica de error de foco para microscopía de expansión y recuperación térmica (ThERM)". Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 2013.



**UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES**

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales  
Departamento de Física

***Técnica de error de foco para microscopia de expansión y  
recuperación térmica (ThERM)***

Trabajo de Tesis para optar por el título de  
Doctor de la Universidad de Buenos Aires en el área Ciencias Físicas

***Esteban A. Domené***

Director de Tesis: Dr. Oscar E. Martínez  
Consejero de Estudios: Dr. Mariano Sigman  
Lugar de Trabajo: Laboratorio de Electrónica Cuántica,  
Departamento de Física, FCEyN, UBA.

***Noviembre 2012***



# Índice General

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Resumen</b>   | <b>1</b>  |
| <b>Abstract</b>  | <b>2</b>  |
| <b>1. Introducción.</b>  | <b>3</b>  |
| 1.1 Radiometría IR.....  | 4         |
| 1.2 Termorefectancia.....  | 8         |
| 1.3 Fotodeflexión.....   | 10        |
| 1.4 Desenfoque por curvatura superficial.....                        | 17        |
| 1.4.1 Detección confocal.....  | 17        |
| 1.4.2 Error de foco.....   | 20        |
| <b>2. Modelo Térmico.</b>  | <b>28</b> |
| 2.1 Problema térmico.....  | 28        |
| 2.2 Termorefectancia.....  | 33        |
| 2.3 Expansión térmica.....   | 35        |
| 2.4 Curvatura.....   | 37        |
| 2.5 Deflexión.....   | 39        |
| 2.6 Desenfoque por curvatura.....                                    | 42        |
| 2.7 Flujo de calor.....  | 45        |
| 2.8 Señal de error de foco (FE).....                                 | 47        |
| 2.9 Cuantificación del desenfoque por curvatura con la señal FE..... | 51        |
| <b>3. Haces Astigmáticos.</b>  | <b>53</b> |
| 3.1 Problema térmico.....  | 53        |
| 3.2 Expansión térmica.....   | 56        |
| 3.3 Curvatura.....   | 57        |
| 3.4 Ajustes no lineales.....   | 59        |
| 3.5 Astigmatismo en el haz de excitación.....                        | 61        |
| 3.6 Astigmatismo en ambos haces.....                                 | 65        |
| <b>4. Dispositivo Experimental.</b>                                  |           |
| 4.1 Cabezal DVD.....   | 71        |
| 4.2 Electrónica de control – Integrado Atmel.....                    | 74        |
| 4.3 Diodos láser de cabezal de DVD.....                              | 77        |
| 4.4 Electrónica de señales FE, DefX, DefY.....                       | 82        |
| 4.5 Óptica de entrada al microscopio.....                            | 87        |
| 4.6 Montaje CCD.....   | 94        |
| 4.7 Alineación escáner.....  | 98        |
| 4.8 Amplificador lock-in.....  | 100       |
| 4.9 Programas de adquisición en LabView.....                         | 101       |
| 4.10 Protocolo de medición.....                                      | 103       |
| 4.11 Posibles mejoras al dispositivo.....                            | 106       |

|  |            |
|--|------------|
| <b>5. Validación de la Técnica.</b>                | <b>112</b> |
| 4.1 Medición de difusividad térmica – Bismuto..... | 112        |
| 4.2 Medición de difusividad térmica – Vidrio.....  | 130        |
| <b>6. Conclusiones.</b>                            | <b>142</b> |
| <b>Agradecimientos.</b>                            | <b>146</b> |
| <b>Bibliografía.</b>                               | <b>150</b> |

# ***Técnica de error de foco para microscopia de expansión y recuperación térmica (ThERM)***

## **Resumen.**

En esta tesis doctoral se presenta el desarrollo de un accesorio fototérmico capaz de caracterizar propiedades térmicas de una muestra midiendo la curvatura superficial de la expansión térmica inducida. La técnica, denominada ThERM por las siglas en inglés *Thermal Expansion-Recovery Microscopy* (microscopia de expansión y recuperación térmica), permite medir mapas bidimensionales de difusividad térmica con una resolución micrométrica. Un haz de excitación modulado calienta la muestra induciendo una respuesta térmica. El esquema de detección consiste en un haz de prueba astigmático y un detector de cuatro cuadrantes. De la diferencia entre las diagonales del detector se genera una señal de error de foco (FE) que resulta proporcional al desenfoque del haz de prueba causado por la curvatura superficial de la muestra. Ajustando barridos en frecuencia con un modelo térmico se obtiene una frecuencia de corte que solo depende de la difusividad térmica de la muestra y el tamaño del haz de excitación. Esto permite caracterizar la difusividad térmica de la muestra de manera simple, con una resolución lateral definida por el tamaño del haz de excitación y resolución axial subnanométrica.

**Palabras Claves:** *difusividad térmica, técnica fototérmica, error de foco*

# ***Focus error technique for Thermal Expansion-Recovery Microscopy (ThERM)***

## **Abstract.**

In this doctoral thesis we present the design of a photothermal microscope accessory capable of characterizing thermal properties of a sample by probing the surface curvature of the induced thermal expansion. The technique, called ThERM (Thermal Expansion-Recovery Microscopy), allows the retrieval of the thermal diffusivity at microscopic levels and hence mapping such magnitude over a sample surface. A modulated pump laser beam heats the sample, thus inducing a thermal response. The detection scheme consists of an astigmatic probe laser and a four-quadrant detector. From the difference between the diagonals of the detector, a focus error signal is obtained (FE) which is proportional to the defocusing of the probe beam due to the surface curvature. Nonlinear fitting of frequency sweeps with a thermal model allows the retrieval of a cutoff frequency which only depends on the thermal diffusivity of the sample and the pump beam size. Therefore a straightforward retrieval of the thermal diffusivity of the sample is possible, with a lateral resolution defined by the pump beam size and a sub-nanometer axial resolution.

**Keywords:** *thermal diffusivity, photothermal technique, focus error*

## Capítulo 1:

# Introducción.

Para predecir el comportamiento térmico de un material se requiere conocer la difusividad térmica ( $D$ ), la efusividad ( $e$ ) y la conductividad ( $\kappa$ ). La difusividad térmica caracteriza la conducción del calor; la efusividad define el contacto térmico entre dos superficies; la conductividad térmica determina el flujo de calor asociado a un dado gradiente de temperatura. En particular, la difusividad térmica se puede medir utilizando experimentos fototérmicos (se extrae en general de la longitud térmica de difusión  $\mu = (D / \pi f)^{1/2}$ ), mientras que la conductividad y la efusividad requieren mediciones absolutas (no relativas), por lo cual resultan más difíciles de medir.

En materiales complejos como cerámicos, películas delgadas y *compuestos* es de sumo interés poder predecir y entender su comportamiento. Para ello es necesario conocer tanto los parámetros físicos a escala macroscópica como las propiedades de cada uno de los constituyentes a escalas microscópicas. Las técnicas fototérmicas permiten determinar propiedades como difusividad térmica a diferentes escalas variando la frecuencia de modulación. Por esto, resultan ideales como herramientas para investigar materiales complejos [Fournier 2001].

Las ondas térmicas inducidas en materiales han sido utilizadas desde principios de la década del 80 con el fin de caracterizar propiedades térmicas (calor específico volumétrico, conductividad térmica, coeficiente de expansión térmica) y no-térmicas (variaciones en el coeficiente de absorción óptica, parámetros elásticos). La mayoría de las técnicas utiliza la excitación y posterior absorción de un haz de luz modulado en intensidad o un haz de electrones para generarlas. Existen una vasta variedad de técnicas

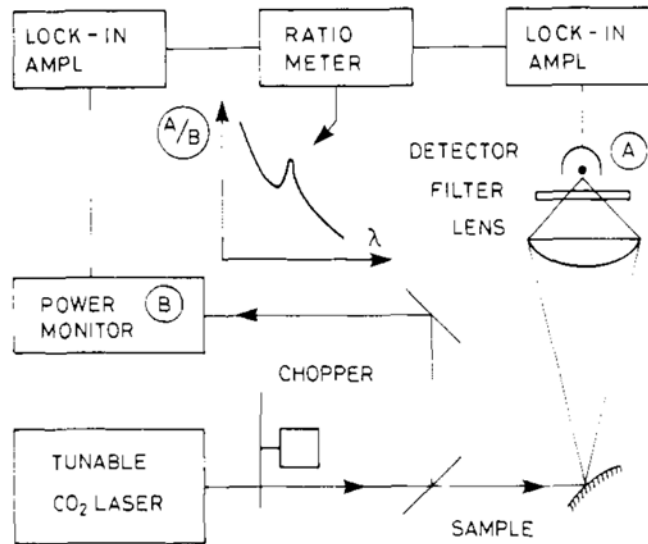


que permiten detectar y caracterizar ondas térmicas. Entre ellas podemos destacar la radiometría IR (detección de la emisión IR de la superficie debido al calentamiento de la misma) [Normal 1979, Busse 1980, Celorrio 2010, Glorieux 1999], fotodeflectión de un haz de prueba debido al efecto “mirage” (cambio en el índice de refracción) [Salazar 1991, Rosencwaig 1983, Opsal 1983] o por la expansión térmica de la superficie (que genera una curvatura en la misma) [Rosencwaig 1983, Opsal 1983, Martínez 2008, Crossa Archiropoli 2010, Crossa Archiropoli 2011] y la termorefectancia (el cambio de reflectividad de la superficie debido a la temperatura es medido con un haz de prueba) [Bincheng 1999, Rochais 2005]. Las técnicas mencionadas son de suma importancia en los llamados ensayos no destructivos dado que son sin contacto y no alteran las propiedades intrínsecas de las muestras analizadas.

### ***1.1 Radiometría IR.***

Las técnicas de radiometría IR consisten en bombear una muestra con un haz de luz para generar una onda térmica y luego medir la emisión IR de la muestra. Dicha señal dependerá de cómo se reflejan y dispersan las ondas dentro del material debido a diferencias en los parámetros térmicos de las estructuras que componen la muestra. De esta manera es posible caracterizar propiedades térmicas a través de la emisión IR medida.

En 1979, Nordal introduce un método llamado *radiometría fototérmica* (PTR por su nombre en inglés *photothermal radiometry*), que permite realizar mediciones espectroscópicas sin contacto en materia condensada [Nordal 1979]. Para ello se utiliza un láser de bombeo para calentar y con un detector térmico se registra la radiación térmica emitida por la muestra, que bajo ciertos supuestos, es proporcional al coeficiente de absorción,  $\alpha(\lambda)$  (ver figura 1.1). Sintonizando el láser de bombeo, se pueden medir espectros que permiten extraer información de transiciones de fase, estados vibracionales de moléculas y caracterizar cantidades diminutas de materiales sobre la superficie de una muestra.

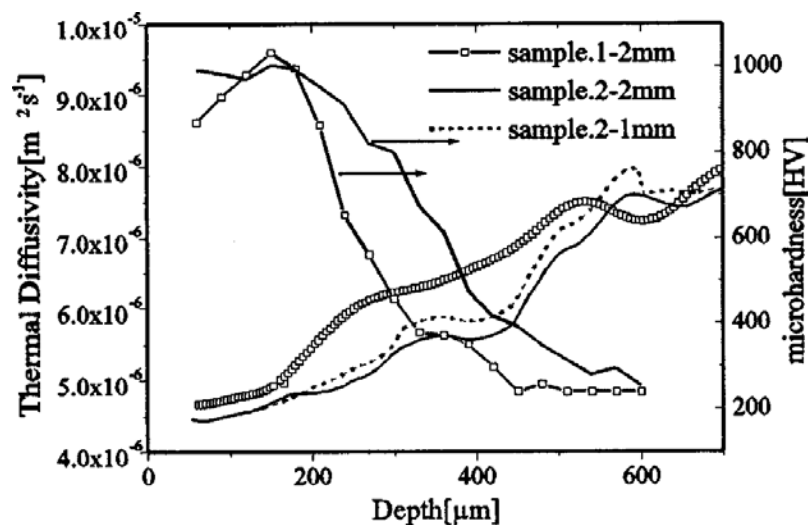


**Figura 1.1:** Dispositivo experimental para a través de la técnica de *radiometría fototérmica*, método introducido en 1979 por Nordal, realizar mediciones espectroscópicas sin contacto de materia condensada [Nordal 1979].

Cuando el bombeo y la detección se realizan del mismo lado de la muestra, la señal medida suele ser dominada por la contribución de estructuras cercanas a la superficie. Esto tiene que ver con la longitud de penetración de la onda térmica dentro del material,  $\mu = (D / \pi f)^{1/2}$  donde  $D$  es la difusividad térmica y  $f$  es la frecuencia de modulación de la fuente de bombeo. Para resolver esto, y poder estudiar propiedades térmicas en un rango de penetración mayor se puede utilizar una técnica fototérmica de transmisión llamada *mapeo de onda térmica* [Busse 1980]. En dicha técnica, la muestra es calentada de un lado por una fuente de luz visible, monocromática y modulada que genera ondas térmicas que se propagan dentro del material. La detección se realiza del otro lado de la muestra, donde se mide la radiación IR emitida que se corresponde a la onda térmica atenuada. La amplitud de la señal es sensible a la estructura óptica superficial mientras que la fase depende de estructura de propiedades térmicas dentro del material (la fase depende del tiempo de reacción térmico y no de la cantidad de calor como la amplitud). Esta técnica permite determinar el espesor de muestras metálicas, la longitud de penetración térmica (y por ende la difusividad térmica), la velocidad de la onda térmica y estudiar estructuras debajo de la superficie. La limitación inherente radica en que a mayor espesor de muestra, menor será la señal detectada del lado contrario a la excitación. Además, vale la pena aclarar, que a diferencia de la técnica de *mapeo térmico infrarrojo* que solo depende de propiedades ópticas del material, la

detección fototérmica caracteriza un efecto dinámico y por ello depende tanto de propiedades ópticas como térmicas.

La radiometría IR se ha utilizado mucho para obtener perfiles en profundidad de propiedades térmicas. En estos casos, para poder reconstruir el perfil de alguna propiedad térmica a partir de los datos medidos se necesita resolver el problema inverso. Aquí radica la mayor dificultad de la técnica, ya que muchas veces dichos problemas no están bien condicionados (más de un perfil ajusta a los datos experimentales medidos). Una solución a esto es utilizar 3 canales de información de la medición (amplitud, fase y derivada de la fase) para reducir las múltiples soluciones a una sola solución continua [Munidasa 1998]. En el trabajo de Munidasa, se resuelve el problema inverso para extraer el perfil en profundidad de la difusividad térmica con datos experimentales de radiometría fototérmica, en muestras inhomogéneas fabricadas a partir de muestras de acero. Un resultado interesante de los perfiles de difusividad térmica en muestras de acero endurecido es que anticorrelacionan muy bien con ensayos destructivos de dureza (ver figura 1.2). Por lo tanto las técnicas fototérmicas que miden perfiles de difusividad son de suma importancia a la hora de realizar una caracterización no destructiva, sin contacto de la dureza.



**Figura 1.2:** Curvas de difusividad térmica reconstruidas a partir de perfiles de amplitud y fase de señal fototérmica en muestras de acero endurecido y sus respectivas mediciones de microdureza con ensayos destructivos. [Munidasa 1998]

Otra técnica para resolver el problema inverso a partir de mediciones de radiometría fototérmica consiste en dividir a la muestra en múltiples capas, cada cual con su propia conductividad térmica, y usar un método de ajuste por cuadrados mínimos para la

temperatura superficial de cada capa [Celorrio 2010]. Mientras menor sea la cantidad de capas, mejor condicionado está el problema (ya que existen menos perfiles de conductividad térmica que ajustan los mismos datos experimentales) al costo de perder resolución espacial en la reconstrucción del perfil. Una limitación de dicho recurso es que se asumen capas paralelas de conductividad constante. Las mediciones se realizan en muestras de acero endurecido con algún tratamiento y para normalizar las mediciones se utiliza una muestra de acero sin tratar. Dada que la muestra de acero sin tratamiento posee otra absorción y una calidad superficial distinta, esto introduce un desfase nuevo y un cambio en la amplitud de la señal que se deben contemplar.

Una tercera técnica para extraer perfiles en profundidad de conductividad térmica en materiales con inhomogeneidades térmicas a partir de mediciones de temperatura superficial es el de *redes neuronales* [Glorieux 1999]. El método neuronal consiste en lograr correlacionar perfiles de conductividad térmica con datos de temperatura superficial a través de un aprendizaje previo del programa utilizando ejemplos tanto numéricos como reales. Es importante que el aprendizaje se realice en el rango de conductividades que uno espera medir en la muestra. El método convencional utilizado, *chi-cuadrado*, tiene el problema de que parte de la información de la conductividad se puede perder debido al error asociado a un punto experimental (no es fácil atribuir un peso correcto a los datos experimentales basándose únicamente en el error). Pero en el caso del método neuronal, la minimización se basa en perfiles de conductividad térmica cargados previamente como ejemplos y no en la señal de entrada, por lo que automáticamente se atribuyen pesos más chicos a valores, aún grandes, que no aportan información relevante.

Una de las limitaciones de las técnicas de radiometría IR es la baja resolución lateral, que en general se asocia con la longitud de onda utilizada como fuente de excitación. Pero aunque se logre enfocar el haz a un área que permita realizar barridos microscópicos, el problema radica en que los detectores para IR son muy ruidosos. Al achicar la zona calentada, disminuye la señal emitida por la muestra y las mediciones resultan ruidosas. Esto hace que la técnica no resulte la más adecuada para realizar mapas microscópicos bidimensionales.

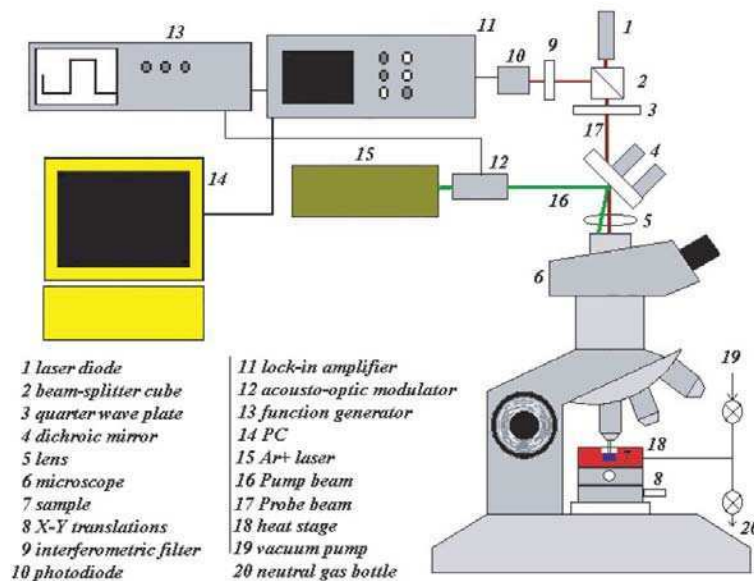
## ***1.2 Termoreflectancia.***

La microscopia termoreflectiva modulada es una de las técnicas más convenientes para medir difusividad térmica en materiales sólidos. Al igual que otras técnicas fototérmicas, es de carácter no destructivo, sin contacto y posee una alta resolución espacial. Los experimentos de termoreflectancia se basan en utilizar un láser de excitación modulado para que el material absorba la luz incidente y aumente localmente la temperatura y por ende cambie la reflectividad superficial. Luego con un segundo láser de prueba se mide la señal reflejada que estará modulada a la frecuencia del haz de excitación. La medición del haz de prueba se efectúa tanto para diferentes frecuencias de modulación del haz de excitación como para diferentes separaciones entre haces. Esto requiere gran estabilidad de puntería de los haces para poder medir la señal fototérmica para diferentes separaciones de haces.

Si uno realiza mediciones de la señal de termoreflectancia variando la distancia entre haces, se puede extraer la difusividad térmica de la pendiente de la fase, como función de la distancia al punto del haz de excitación [Bincheng 1999]. Pero en el caso de películas delgadas sobre un sustrato, la señal de termoreflectancia depende no solo de la difusividad de la película, sino de la del sustrato y de la resistencia térmica entre la película y el sustrato. En general se asume conocer la difusividad del sustrato y la resistencia térmica, pero errores en estos valores se traducen directamente en errores en la determinación de la difusividad térmica de la película delgada. Otra opción es realizar un ajuste multiparamétrico midiendo el perfil de fase (se mide la fase para diferentes separaciones entre haces) para 3 frecuencias distintas [Bincheng 1999]. De esta manera, a través de un ajuste por cuadrados mínimos con un modelo de difusividad de dos capas, es posible extraer la difusividad de la película, del sustrato y la resistencia térmica entre ambas. En general se utiliza la fase para los ajustes ya que suele ser menos dependiente de fenómenos no térmicos. Cuando la difusividad de la película es muy parecida a la del sustrato, es de suma importancia conocer con precisión la difusividad del sustrato para minimizar los errores del ajuste.

Otra gran ventaja de los métodos fototérmicos es que al ser sin contacto se pueden hacer estudios en función de la temperatura, utilizando una platina de calentamiento para

microscopio. Técnicas que requieren un contacto directo con la muestra no permiten realizar dichas mediciones a temperaturas elevadas. Utilizando una platina de calentamiento y microscopía fotoreflexiva, se han hecho estudios de difusividad térmica en estructuras de fibras de carbono en función de la temperatura, hasta alrededor de 1000 °C [Rochais 2005] (ver figura 1.3). En este experimento, se mide la reflexión de un haz de prueba continuo luego de ser reflejado sobre la superficie de una muestra calentada periódicamente por un haz de excitación. La amplitud de la señal medida en un amplificador lock-in depende de los parámetros ópticos y térmicos mientras que la fase depende solamente de la difusividad térmica y la frecuencia de modulación. La preparación de la muestra requiere un pulido tipo espejo y la muestra debe ser térmicamente delgada para evitar tener un gradiente grande de temperatura en la dirección perpendicular a la superficie. Aún siendo un método sin contacto, las mediciones a altas temperaturas (a partir de los cientos de grados Celsius) traen aparejadas ciertas dificultades: oxidación de la muestra cambia su reflectividad; la expansión térmica de la superficie desenfoca los haces.



**Figura 1.3:** Dispositivo experimental utilizado para realizar caracterizaciones térmicas en muestras hasta 1000°C con la técnica de microscopía fotoreflexiva. [Rochais 2005]

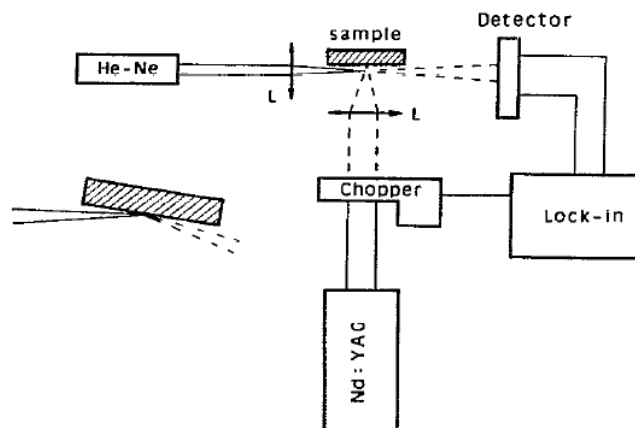
Al mover el haz de prueba respecto al de excitación y realizar mapas bidimensionales de la muestra, se puede identificar los ejes principales de la difusividad térmica y analizar la anisotropía. Realizar un barrido bidimensional completo de la muestra requiere aproximadamente de 8 horas de medición. Resultados preliminares se pueden extraer directamente de la pendiente de la fase. En muestras isotrópicas, la caracterización en función de la temperatura se realiza efectuando barridos unidimensionales y luego

ajustando el perfil de fase obtenido, del cual se extrae el valor de la difusividad térmica. En muestras anisotrópicas, si los dos ejes de anisotropía se encuentran sobre el plano de la muestra, se pueden extraer los valores principales de difusividad térmica del mapa bidimensional de la fase. De las líneas de isoamplitud se puede extraer el nivel de anisotropía térmica de la muestra.

### 1.3 Fotodeflexión.

La fotodeflexión es una técnica fototérmica que se basa en medir la deflexión de un haz de prueba debido a un fenómeno térmico inducido, en general una deformación superficial como respuesta al calentamiento local, por un haz de excitación.

En 1991, Salazar presenta un trabajo el cual constituye la corroboración experimental de la teoría generalizada del efecto *mirage* ó deflexión de haz óptico, usado para medir difusividad térmica en muestras sólidas [Salazar 1991]. En muestras con superficies pulidas, utilizan una configuración experimental en la cual el haz de prueba incide en un pequeño ángulo respecto a la superficie (método de rebote); mientras que en muestras con superficies rugosas el haz de prueba incide en forma rasante, casi paralelo a la superficie (método rasante) (ver figura 1.4). De la respuesta en frecuencia de la señal fototérmica se puede extraer el valor de difusividad térmica de la muestra, conociendo previamente propiedades termo-ópticas del material en volumen (*bulk*).

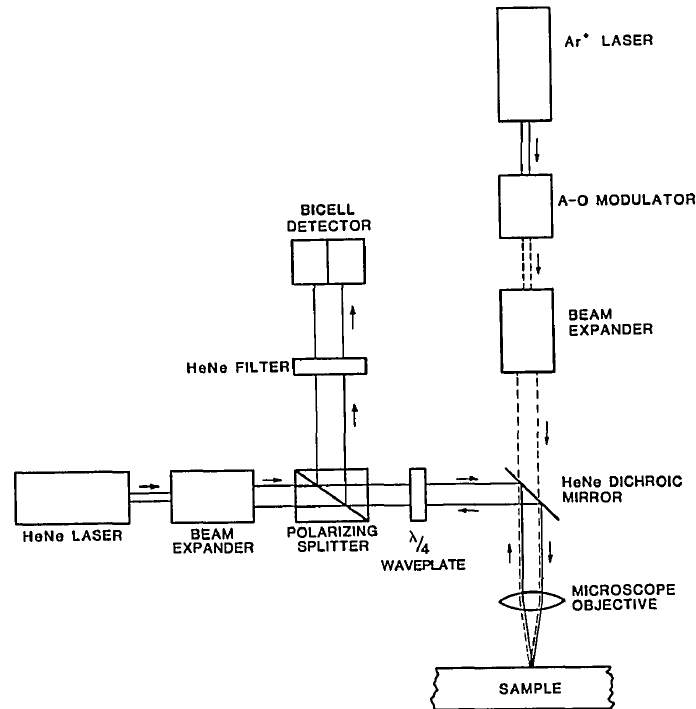


**Figura 1.4:** Dispositivo experimental que constituye la corroboración experimental de la teoría generalizada del efecto *mirage*. Se observan las dos configuraciones de entrada del haz: una rasante a la superficie y otra en ángulo. [Salazar 1991]

Lo interesante es que analizan el uso de ambos métodos en muestras con diferentes propiedades: opacas y térmicamente gruesas; opacas y térmicamente delgadas; transparentes. En las primeras, opacas y térmicamente gruesas, ambos métodos resultan adecuados y se pueden usar para extraer la difusividad térmica de la muestra. En muestras opacas y térmicamente gruesas, el método de rebote no resulta adecuado por la dilatación térmica que genera una protuberancia en la muestra que desvía el haz fuera del detector, por lo cual se opta por utilizar el método rasante con bajas potencias de bombeo para disminuir los efectos termoelásticos en la muestra. Y por último, para muestras transparentes solo resulta adecuado el método de rebote.

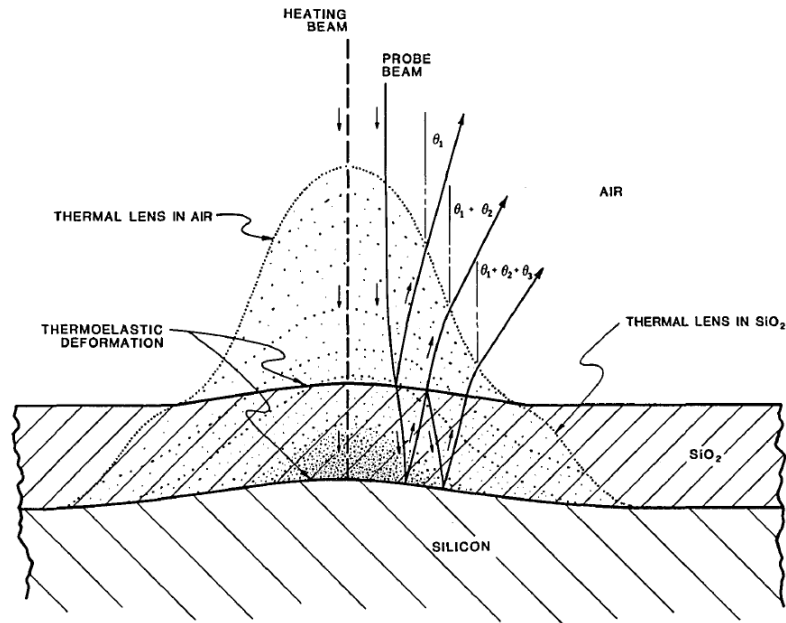
Usualmente, para determinar espesores de películas delgadas, se requiere una examinación microscópica de la sección lateral de una muestra o la medición de un escalón. Estos métodos son en general ensayos destructivos o de contacto. Las opciones de métodos sin contacto suelen ser muy indirectos y requieren conocimiento previo de parámetros del material conjuntamente con un modelo comprensivo de la señal que se espera medir. Además de ser útil para estudiar propiedades térmicas en materiales, la técnica de fotodeflectión puede ser aplicada a la determinación de espesores de películas delgadas [Rosencwaig 1983, Opsal 1983]. De esta manera es posible determinar espesores en forma no destructiva, sin contacto, con una resolución espacial micrométrica (haz de prueba y excitación muy enfocados) en películas tanto óptimamente opacas como transparentes (requerimiento para la industria de semiconductores), utilizando ondas térmicas de alta frecuencia (mayor a 100 kHz) inducidas por un haz de excitación. Se utiliza un haz de excitación y un haz de prueba separados una distancia fija y se mide la deflexión con un fotodiodo de dos celdas (ver figura 1.5).





**Figura 1.5:** Esquemático del dispositivo armado para caracterizar el espesor de películas delgadas utilizando deflexión de un haz láser. [Opsal 1983]

Para extraer el espesor de la película delgada se utiliza un modelo extendido del modelo de Opsal y Rosenwaig, que demuestra como obtener perfiles de profundidad y espesor de multicapas del análisis de la temperatura superficial. Este nuevo modelo se extiende a tres dimensiones, incluye deformaciones termoelásticas de superficie, efectos de lente térmica, efectos ópticos, efectos no lineales de la dependencia de parámetros térmicos con la temperatura y hasta interferencia por reflexiones en muestras transparentes (ver figura 1.6). Dada la cantidad de efectos que se deben contemplar en simultáneo, la técnica requiere de una calibración exhaustiva. Así y todo, logran obtener una sensibilidad en la determinación de desplazamientos superficiales locales de  $10^{-4} \text{ \AA}/(\text{Hz})^{1/2}$  a 1 MHz.



**Figura 1.6:** Descripción esquemática de los fenómenos físicos que afectan al haz de prueba en una muestra de SiO<sub>2</sub> sobre un sustrato de silicio incluyendo deformaciones termoelásticas de las interfaces SiO<sub>2</sub>-Si y SiO<sub>2</sub>-aire, lentes térmicas de signos opuestos en aire y SiO<sub>2</sub> y efectos de interferencia óptica en la película delgada de SiO<sub>2</sub>. [Rosenwaig 1983]

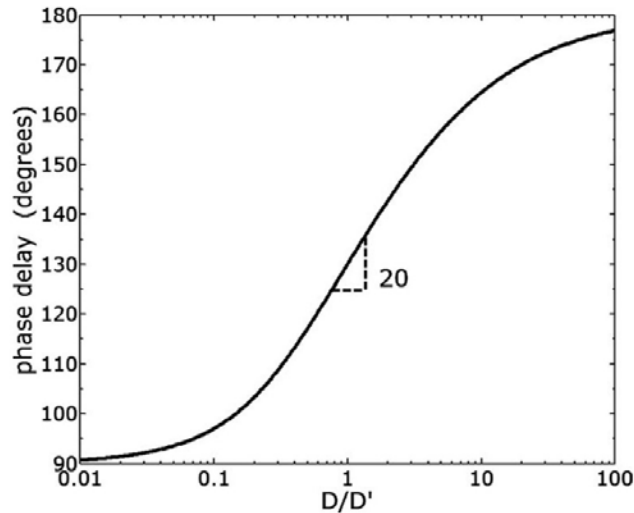
En experimentos fototérmicos de termorefectancia es de suma importancia asegurarse que la señal medida se corresponda solamente a un cambio en la reflectividad de la muestra con la temperatura y que no haya contribuciones indeseadas de fotodeflexión que aparezcan debido a la dilatación térmica de superficie. Una manera de evitar señal de fotodeflexión es centrando ambos haces, pero la técnica de termorefectancia se basa en medir el cambio de reflectividad en función de la posición relativa de los haces y la respuesta térmica del material puede afectar la reflexión del haz de prueba. En muestras metálicas, se suelen observar saltos de fases inesperados utilizando este protocolo que parece sencillo y que brinda buenos resultados en muestras dieléctricas. Una solución a este problema es asumir la presencia de ambos fenómenos (termorefectancia y fotodeflexión) y luego ajustar los datos con un modelo completo [Martínez 2008]. La respuesta en frecuencia de ambos fenómenos térmicos es distinta, pero en ambos casos se observa una misma frecuencia de corte  $\omega_0 = 2D/\sigma^2$ , donde  $D$  es la difusividad térmica y  $\sigma$  es el tamaño del haz de excitación. A la frecuencia de corte, el calor difunde una distancia del orden del tamaño del haz. De esta manera, con el ajuste se atribuye un peso a cada fenómeno en la señal medida y se extrae, de la frecuencia de corte y el tamaño de haz medido con una cámara CCD, la difusividad térmica de la muestra. La técnica propuesta es sin contacto y permite caracterizar propiedades

térmicas dentro de un único grano cristalino (resolución de aproximadamente  $1 \mu\text{m}^3$ ) sin sufrir efectos de frontera de la estructura granular de la muestra.

Las propiedades de materiales metálicos no solo dependen de la composición del mismo, sino también de que fases se encuentran presentes en la microestructura. Por ello es de suma importancia contar con técnicas que permitan caracterizar y distinguir diferentes fases cristalinas. En general se utilizan microscopias de barrido basadas en microscopia electrónica: para fases de diferente composición se utiliza espectroscopia dispersiva de energía (EDS); para fases con composición química similar se requiere de técnicas más elaboradas como difracción de electrones retrodispersados (EBSD). Dado que la difusividad térmica es una propiedad que depende fuertemente de la estructura cristalográfica y cuyo valor permite distinguir entre dos fases con composición química similar, técnicas fototérmicas que permitan realizar mapas bidimensionales de la difusividad térmica resultan de suma utilidad. La mayoría de los métodos fototérmicos se basan en determinar el retardo espacial de la señal como función de la separación entre el haz de excitación y el haz de prueba ó su dependencia con la frecuencia de modulación de la excitación para una separación de haces constante. Esto suele requerir gran estabilidad de puntería de los haces.

El método propuesto por Crossa Archiopoli, *et al.* permite extraer la difusividad térmica de la muestra solo midiendo el retardo en la fase del haz de prueba respecto a la modulación del haz de excitación a una frecuencia constante [Crossa Archiopoli 2010]. Cabe aclarar que este método requiere calibrar el retardo temporal realizando un barrido en frecuencia en solo algunos puntos de la muestra y mantener el tamaño de haz, la forma y la separación entre haces constante. La señal medida proviene de dos fenómenos fototérmicos: termoreflectancia debido al cambio de temperatura inducido; fotodeflectión consecuencia de la deformación superficial. Bajo ciertas condiciones o propiedades de la muestra, se puede despreciar uno de los dos fenómenos (por ejemplo para haces centrados no existe fotodeflectión) y esto permite extraer la difusividad térmica de medir solo el retardo de fase. Así se realizan barridos bidimensionales de la muestra con una resolución que depende no solo del tamaño de los haces, sino también de la frecuencia de modulación, con una sensibilidad del orden de 1 grado cada 5% de cambio en la difusividad térmica (ver figura 1.7). El tamaño del haz define la resolución superficial, y conjuntamente con la frecuencia, definen la longitud de penetración

térmica, que determina hasta que profundidad del material penetra el haz de excitación. La difusividad térmica medida se corresponderá con la de la región del material alcanzada por la onda térmica. El hecho de extraer la información térmica de un mapa de fase posee una ventaja experimental intrínseca: la señal resulta insensible a la inclinación de la muestra. De la correlación hallada entre la difusividad térmica y el retraso en la fase a frecuencia fija, se pueden estudiar y medir cambios estructurales en tiempos cortos.



**Figura 1.7:** Dependencia de la fase de la señal con la difusividad térmica normalizada (se normaliza con valores medidos en solo algunos puntos de la muestra) cuando solo es apreciable el término de fotodeflectión (despreciando la contribución de termorefectancia). La mayor pendiente es de alrededor de 20 para  $D/D'=1$ . [Crossa Archiopoli 2010]

Además, la misma técnica de fotodeflectión permite caracterizar el aumento de la dureza en muestras de acero tratado superficialmente, a través de mapas bidimensionales con resolución micrométrica [Crossa Archiopoli 2011]. Esto se debe a la fuerte correlación lineal que existe entre la dureza y la inversa de la difusividad térmica (aunque solo se ha demostrado para acero endurecido, se espera que se cumpla en otros metales donde el endurecimiento ocurra por precipitados u otros defectos en la red cristalina). El aumento de defectos en la muestra (imperfecciones, precipitados, fronteras de granos, etc.), aumenta la dureza y disminuye el transporte de calor (limita la velocidad de transporte de electrones y fonones, aumentando la resistividad), que se traduce en una disminución en la difusividad térmica. Cabe aclarar que el método requiere de una calibración previa para relacionar a la dureza con la inversa de la difusividad para la muestra previa al tratamiento.

En la industria, la dureza se suele medir con nanoindentadores (método destructivo y lento) o de manera indirecta con espectroscopia dispersiva de energía o difracción de electrones retrodispersados donde se determinan las estructuras de las fases que componen la muestra. Este nuevo método resulta ideal para la industria metalúrgica como herramienta de inspección por su simpleza, su velocidad de barrido (se puede integrar apenas 2 ms con un error en la fase de  $1^\circ$  se requiere integrar apenas 2 ms por punto para un error en la fase de  $1^\circ$  y con 0.2 ms el error es de  $2-3^\circ$ ), bajo costo y que permite realizar mapas bidimensionales donde se pueden ver zonas anómalas que resultan indistinguibles para microscopias ópticas convencionales y hasta para microscopias electrónicas de barrido.

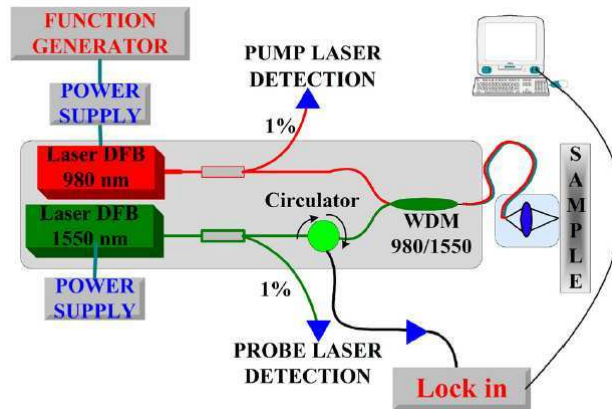
Con la premisa de superar los problemas de puntería asociados a la mayoría de las técnicas fototérmicas que utilizan dos haces, uno de prueba y otro de excitación, se han desarrollado en paralelo dos nuevas técnicas que permiten obtener mapas microscópicos bidimensionales de la difusividad térmica. La primera, desarrollada en el Laboratorio de Haces Dirigidos (LHD) de la facultad de Ingeniería de la UBA a cargo de Nelly Mingolo, se basa en el uso de fibras ópticas y componentes de las telecomunicaciones para asegurar la colinealidad de ambos haces [Mingolo 2012]. El segundo, tema de esta tesis doctoral, fue desarrollado en el Laboratorio de Electrónica Cuántica (LEC) bajo la dirección de Oscar E. Martínez y se basa en el uso de un detector de cuatro cuadrantes y un haz de prueba astigmático [Domené 2009, Domené 2013]. Ambas técnicas comparten el hecho de que las señales que miden son sensibles al desenfoque producido por la curvatura de la superficie. Dicha curvatura es inducida por el haz modulado de excitación y se debe a la dependencia espacial del aumento de temperatura que genera una expansión no uniforme en la muestra.

## ***1.4 Desenfoque por curvatura superficial inducida:***

### ***1.4.1 Detección confocal. [Mingolo 2012]***

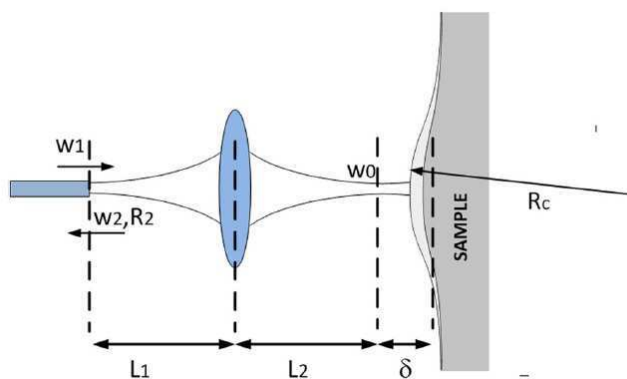
El método fototérmico propuesto por Mingolo [Mingolo 2012] se basa en caracterizar la curvatura de la superficie producto de la expansión térmica, que corresponde a la respuesta térmica del material debido al aumento de temperatura provocado por la absorción de un haz de excitación modulado. Dicho método permite obtener mapas bidimensionales microscópicos de la difusividad térmica.

El dispositivo experimental hace uso de componentes del campo de las telecomunicaciones por fibras ópticas, resultando en un montaje robusto (ver figura 1.8). Además, el hecho de que ambos haces viajen por la misma fibra monomodo hace que resulten inherentemente colineales, evitando problemas asociados a la estabilidad de puntería (necesaria tanto para mediciones de fotodeflectión, como para termoreflectancia).



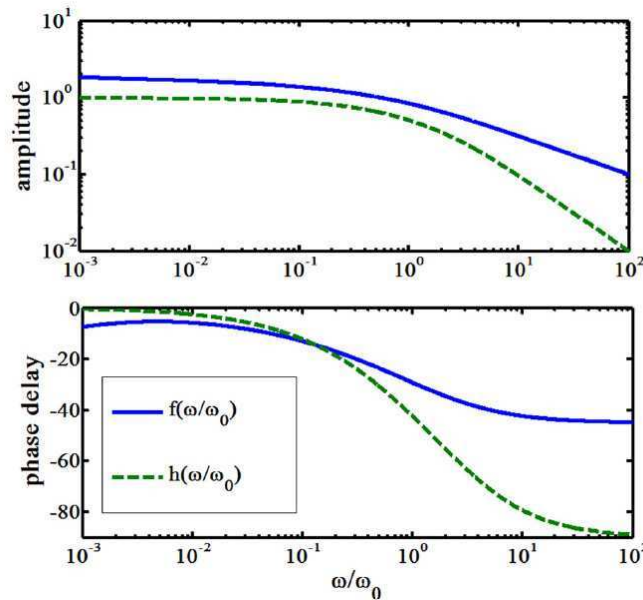
**Figura 1.8:** Esquemático del dispositivo experimental utilizado para medir difusividad térmica. El mismo hace uso de componentes de fibras ópticas (diodos láser acoplados a fibra, circuladores, divisores de haz de fibra, acopladores, etc.) provenientes del campo de las telecomunicaciones. [Mingolo 2012]

El haz de excitación modulado calienta la muestra, generando una expansión térmica, y consecuente curvatura de la superficie. Un haz de prueba, ligeramente desenfocado, cuantifica el grado de curvatura superficial a través del análisis de la potencia reinyectada en la misma fibra luego del reflejo sobre la superficie (ver figura 1.9). La señal, medida por un fotodiodo IR estándar, tendrá una componente que corresponde al cambio de reflectividad debido al cambio de temperatura (resulta proporcional a la derivada del índice de refracción  $n$  respecto a la temperatura  $T$ ,  $dn/dT$ ) y otro que se corresponde con el desenfoco del haz de prueba generado por la curvatura superficial que altera la transmisión a través de la fibra. Ambas contribuciones están moduladas a la frecuencia del haz de excitación. El retraso en la fase de la señal está directamente relacionado con la difusividad térmica de la región examinada.



**Figura 1.9:** Esquema de la última etapa del dispositivo en el cual ambos haces, el de excitación y el de prueba son enfocados sobre la muestra. El haz de excitación calienta la superficie que, en consecuencia, se expande generando una curvatura de radio  $R_c$ . El haz de prueba se refleja y es parcialmente reinyectado dentro de la fibra óptica. [Mingolo 2012]

Ambos fenómenos poseen la misma frecuencia de corte ( $\omega_0 = 2D/\sigma^2$ ), pero respuestas en frecuencias diferentes: la amplitud, para frecuencias mayores a la de corte, decae como  $(\omega/\omega_0)^{-1/2}$  en el caso de termoreflectancia y como  $(\omega/\omega_0)^{-1}$  para el caso de desenfoque por curvatura (ver figura 1.10).



**Figura 1.10:** Curvas teóricas de amplitud y fase de la respuesta en frecuencia de la señal de termoreflectancia (f) y fotodeflección (h). [Mingolo 2012]

Además, variando el desenfoque del haz de prueba se puede estudiar el peso de ambas contribuciones a la señal total: la termoreflectancia es simétrica respecto al desenfoque, mientras que el cambio en la reinyección debido a la curvatura es asimétrico. Se realizan barridos en función de la frecuencia de modulación del haz de excitación y luego de un ajuste no lineal de la amplitud y fase de la señal medida, contemplando ambos fenómenos, se extrae el valor de la frecuencia de corte  $\omega_0$ . Luego se mide con una cámara CCD el tamaño del haz de excitación  $\sigma$ , y así se determina la difusividad térmica correspondiente al volumen calentado. Si la señal es dominada por el desenfoque debido a la curvatura superficial (o sea, se puede despreciar la contribución de termoreflectancia), solo se requiere medir la fase a una frecuencia fija, ya que la misma solo depende de  $\omega/\omega_0$  [Crossa Archiopoli 2010, Crossa Archiopoli 2011].

Otro detalle relevante es como escalan las señales con el tamaño del haz de excitación  $\sigma$ . El desenfoque por curvatura es proporcional a  $(w_0/\sigma)^2$ , donde  $w_0$  es el tamaño de la cintura del haz de prueba. Esto hace que, dado que ambos son enfocados con el



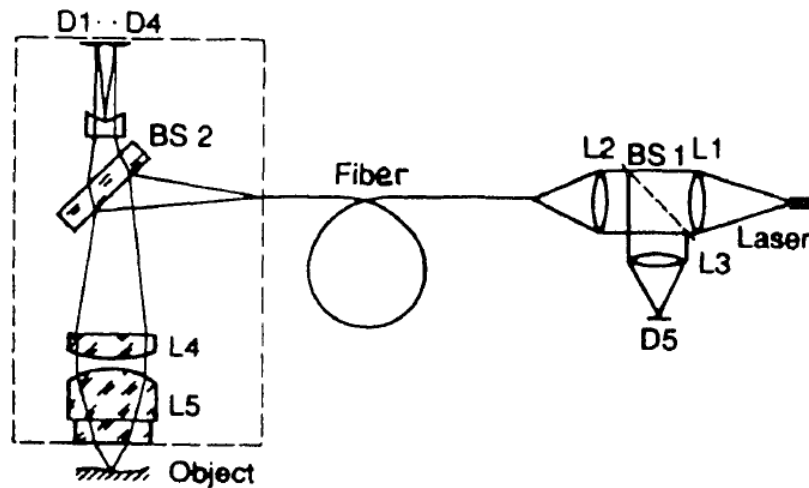
mismo objetivo, un cambio de objetivo no resulte en un cambio en la señal medida (la señal resulta independiente de la resolución lateral). Pero para la termorefectancia, la señal resulta proporcional a  $\sigma^{-1}$ , y por ende un cambio en el tamaño del haz de excitación repercute en un aumento de señal debido a la termorefectancia. Esto se podría entender debido a que la misma cantidad de potencia lumínica se enfoca en un área menor, causando un mayor aumento de temperatura y como consecuencia un cambio de reflectividad mayor.

### ***1.5.1 Error de foco.***

Otra alternativa para solucionar los problemas de puntería, que además soluciona el hecho de tener que ajustar a más de un fenómeno térmico se corresponde al trabajo realizado en esta tesis doctoral. La técnica fototérmica se basa en el uso de cabezales de grabadoras de DVD, aprovechando la señal de error de foco que originalmente sirve para determinar la posición del disco respecto a la lente de salida del cabezal (la lente se puede desplazar mediante un mecanismo de bobinas). Para generar una señal de error de foco, sensible al desenfoque del haz, se utiliza un haz astigmático y un detector de cuatro cuadrantes. Determinando la diferencia entre las diagonales del detector se obtiene una señal asimétrica que pasa por cero cuando el haz se encuentra enfocado sobre la superficie reflectora y que permite determinar cuanto y de que lado del foco se encuentra la muestra (ver sección 2.8 Señal de error de foco (FE)). Del detector de cuatro cuadrantes se pueden extraer: la señal suma, que no es más que la suma de la intensidad de los cuatro detectores; dos señales de deflexión, de la diferencia entre la mitad de arriba con la mitad de abajo, o de la diferencia entre la mitad izquierda y la mitad derecha del detector; la señal de error de foco que mide el desbalance de las diagonales del detector.

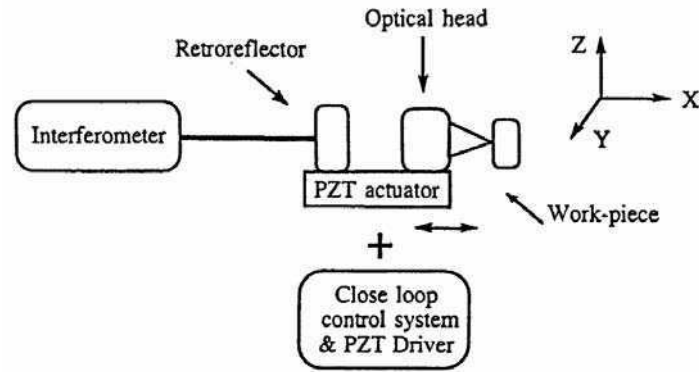
La implementación de lectoras y grabadoras de CD y DVD como sensores ópticos compactos, económicos y de alta precisión no representa ninguna novedad en sí mismo ya que existen múltiples trabajos previos. En el año 1991, basándose en la tecnología de lectoras de CD, se desarrolló un microscopio óptico confocal compacto de barrido [Benschop 1991] (ver figura 1.11). En este caso particular, el láser del cabezal es reemplazado por un extremo de una fibra óptica monomodo que actúa como fuente

emisora y como detector puntual. El hecho de ser liviano y compacto permite barrer todo el microscopio respecto a la muestra que se desea analizar. De las distintas señales del detector de cuatro cuadrantes se extrae distinta información: de la suma se detectan los cambios en el coeficiente de reflexión de la muestra; de las señales de deflexión se estudian los cambios de fase de la luz en la muestra; y la señal de error de foco se utiliza para mantener la muestra enfocada usando un lazo de realimentación que permite sacar imágenes nítidas de la muestra aún cuando posee variaciones en altura.



**Figura 1.11:** Esquemático del microscopio óptico confocal basado en un cabezal de CD (recuadro punteado). El láser del mismo es reemplazado por un láser que se acopla a una fibra óptica. La medición confocal se realiza a través de la misma fibra y se mide sobre el detector de cuatro cuadrantes (D5). [Benschop 1991]

Otra aplicación muy común para los cabezales de CD y DVD es la de sensor para perfilometría. En estos casos, la señal de error de foco se utiliza como señal de referencia para un lazo de realimentación que mantiene la distancia entre la lente de salida del cabezal y la muestra constante (la muestra se mantiene siempre enfocada). Los métodos interferométricos están limitados a medir escalones de  $\sim \lambda/4$ , y las técnicas de corrimiento de fase para múltiples longitudes de onda están limitadas por la profundidad de foco de la lente objetivo utilizada. Acoplando un piezoeléctrico al cabezal con un rango de movimiento de  $\sim 90 \mu\text{m}$ , y luego montando un espejo solidario al cabezal que sirva como uno de los espejos de un interferómetro de Michelson, permite armar un perfilómetro capaz de determinar tanto escalones grandes como pequeños [Zhang 1997] (ver figura 1.12). De esta manera, acoplando un cabezal de CD y un interferómetro, se puede armar un perfilómetro capaz de medir perfiles con una resolución nanométrica en superficies que posean rugosidades o escalones microscópicos.

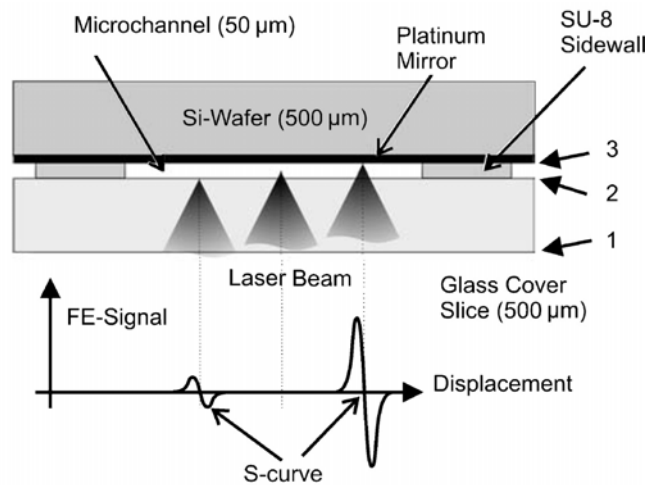


**Figura 1.12:** Esquemático del perfilómetro desarrollado, basado en una lectora modificada de CD. El mismo permite trabajar en rangos chicos (interferómetro) y rangos grandes (piezoeléctrico con señal de error de foco del cabezal). [Zhang 1997]

En vez de utilizar un piezoeléctrico, se pueden utilizar las propias bobinas del cabezal para desplazar la lente de salida y así cambiar el plano de foco para utilizar el cabezal entero como perfilómetro con un rango de desplazamiento máximo de  $200\ \mu\text{m}$ , una precisión de  $0.2\ \mu\text{m}$  y una resolución de  $0.1\ \mu\text{m}$  [Fan 2001]. Una alternativa que mejora la precisión ( $34\ \text{nm}$ ) pero achica el rango de medición ( $10\ \mu\text{m}$ ) es el de fijar las bobinas y solo utilizar la señal de error de foco y su rango lineal para determinar el perfil de la muestra [Fan 2000].

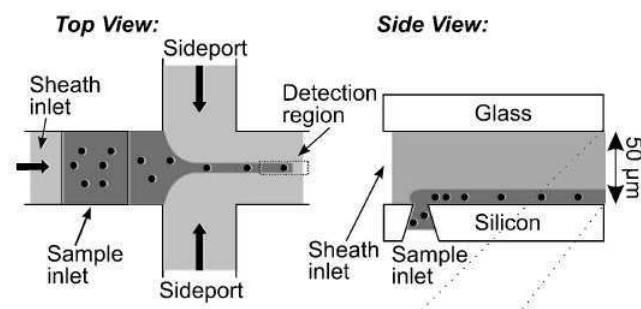
La misma señal de error de foco puede ser utilizada para escanear y caracterizar microestructuras y como detector de un citómetro de flujo para el análisis de células biológicas individuales [Kostner 2008]. Para las microestructuras, se alimentan las bobinas de la lente de salida del cabezal y se desplazan a velocidad constante, monitoreando la señal de error de foco en función del tiempo. La idea es utilizarlo en microsistemas de microfluídica, donde los microcanales están cubiertos por una capa de vidrio por lo cual no se pueden medir las dimensiones las profundidades de los canales con una sonda de contacto. Moviendo la lente de salida, se cambia el plano de foco del haz y por ende se obtendrá una curva de error de foco de cada superficie reflectante, de cada interfaz (ver figura 1.13). El cero de cada curva de error de foco corresponderá al haz enfocado sobre una interfaz y determinando el tiempo entre ceros consecutivos se puede determinar el espesor de la capa de material, dado que la velocidad es constante. La técnica posee algunas desventajas: si las capas se encuentran muy pegadas, se solapan las curvas de error de foco y no se logran distinguir los ceros consecutivos; las

capas de material deben ser semitransparentes para que la luz logre atravesarlas. La gran ventaja reside en poseer una técnica óptica sin contacto.



**Figura 1.13:** Principio de la medición para determinar las dimensiones de un microsistema de microfluídica. El gráfico muestra las curvas de error de foco en función del desplazamiento de la lente de salida del cabezal. Cada vez que se pasa por una interfaz se genera una señal de error de foco cuya altura depende de la reflectividad de la interfaz. Determinando la distancia entre los ceros de las curvas de error de foco consecutivas se pueden determinar las dimensiones de la muestra. [Kostner 2008]

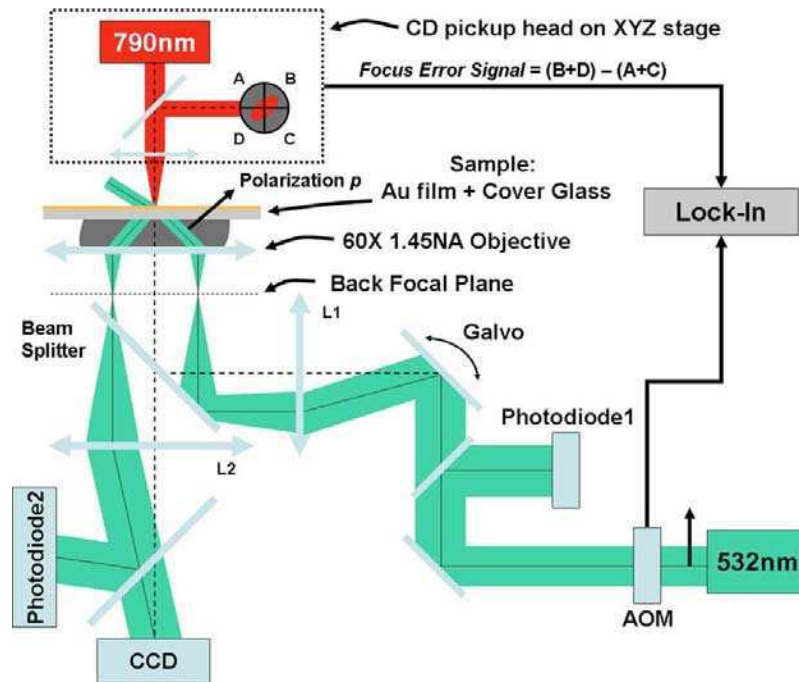
Los citómetros de flujo suelen utilizar un haz enfocado y cuando una célula pasa por el foco del haz dispersa luz o flúorese, lo cual permite detectarla (ver figura 1.14). En general los sistemas son grandes, muy caros y utilizados particularmente para contar células. Es fácil adaptar un cabezal de DVD a un sistema de microcanales y utilizarlo para contar células: se enfoca el haz sobre el fondo reflectivo de un microcanal y al pasar una célula por el haz, altera la luz reflejada y se observa un cambio en la señal de error de foco.



**Figura 1.14:** Flujo de células en un microcanal. En la región de detección es donde se enfoca el haz de prueba que es dispersado cuando pasa una célula por esa región. [Kostner 2008]

La espectroscopia por resonancia de plasmones superficiales (SPR) es una herramienta poderosa utilizada para caracterizar constantes ópticas en películas delgadas o para aplicaciones de biosensores. En general la técnica consiste en realizar ajustes de curvas de reflexión utilizando modelos de varias interfaces con las ecuaciones de Fresnel,

donde no se contemplan pérdidas por dispersión. Debido a que los resultados se obtienen del ajuste, la técnica resulta muy modelo dependiente y el hecho de despreciar pérdidas por dispersión puede conllevar a errores significativos en los datos recuperados. Esto sirvió para motivar el desarrollo, en los primeros años de la tesis doctoral, de un sistema basado en un cabezal de CD capaz de caracterizar las pérdidas debidas a dispersión en películas delgadas midiendo de forma directa la absorción y mostrar que en general no pueden ser despreciadas [Domené 2009] (ver figura 1.15).



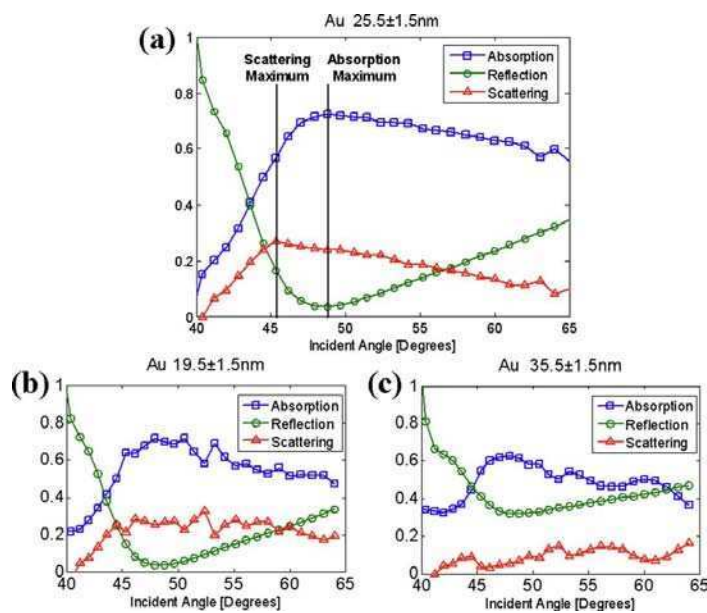
**Figura 1.15:** Dispositivo experimental construido para caracterizar pérdidas debidas a dispersión en películas delgadas. Consiste en un microscopio comercial en una configuración de reflexión total interna con un cabezal de CD montado arriba de la platina como detector fototérmico. [Domené 2009]

El cabezal de CD se monta sobre un microscopio comercial de reflexión total interna (Olympus IX71 TIRF). Un láser de 532nm, modulado por un acusto-óptico, con una potencia máxima de 40mW y con polarización p, excita plasmones superficiales en una configuración de Kretschmann. El cabezal de CD se utiliza como sensor de dilatación, calibrando previamente la señal de error de foco. Las contribuciones de termoreflectancia se anulan midiendo con el haz enfocado sobre la muestra, mientras que la señal de deflexión se desprecia centrando el haz del cabezal con el haz de excitación. La señal de error de foco posee una sensibilidad de  $1 \mu\text{m}/\text{V}$  y un rango lineal de  $7 \mu\text{m}$ . Dado que el haz de excitación se encuentra modulado, inducirá una dilatación térmica modulada a la misma frecuencia. Por lo tanto, la señal error de foco estará

modulada y se mide con un amplificador lock-in, donde una señal del orden de  $\mu\text{V}$  se corresponderá a un desplazamiento del orden de los pm.

La reflexión del haz de excitación se mide con un fotodiodo colocado en el puerto de cámara del microscopio, mientras que el cabezal de CD cuantifica, en forma simultánea, la expansión térmica de un cubreobjetos de vidrio. Dicha expansión se corresponde a la respuesta térmica debido a la absorción por parte de la película delgada metálica (espesores distintos de Au) depositada sobre cubreobjetos de vidrio. La expansión térmica medida resulta proporcional a la potencia absorbida. Para poder calibrar la constante de proporcionalidad se necesita una muestra suficientemente gruesa para que la onda evanescente no alcance la interfaz metal-aire (no haya plasmon superficial y por ende no haya pérdidas por dispersión), pero suficientemente delgada para que se pueda despreciar el flujo de calor por la película. Se utilizó una película delgada de Pt para satisfacer ambas condiciones y poder calibrar la constante de proporcionalidad entre la dilatación térmica y la potencia absorbida.

Combinando la medición de absorción con mediciones de reflectividad en tres películas delgadas de Au (espesores de 19.5, 25.5 y 35.5 nm), se determinan las pérdidas por dispersión en función del ángulo (para ángulos mayores al crítico) (ver figura 1.16). En todos los casos las pérdidas observadas no son despreciables (alcanzan más del 20 % en la muestra de 25.5 nm) y poseen una dependencia angular no trivial. Cabe destacar que la absorción depende de la parte compleja de la función dieléctrica del material, mientras que la dispersión depende de la rugosidad superficial (los modos evanescentes superficiales se acoplan a la rugosidad superficial para convertirse en modos propagantes).



**Figura 1.16:** Datos experimentales de reflexión, absorción y dispersión en películas delgadas de Au de diferentes espesores: (a)  $25.5 \pm 1.5$  nm, (b)  $19.5 \pm 1.5$  nm, (c)  $35.5 \pm 1.5$  nm. [Domené 2009]

Con las mediciones realizadas de reflexión y absorción, se realizaron ajustes usando ecuaciones de Fresnel para un modelo de tres capas (vidrio-Au-aire) sin contemplar pérdidas de dispersión. Los valores obtenidos con la curva de reflexión difieren significativamente de los valores de la curva de absorción: 20 % de discrepancia en el valor del espesor de la película; 50 % de discrepancia en el valor de la parte real e imaginaria de la función dieléctrica compleja. Estas diferencias avalan la necesidad de desarrollar modelos que contemplen pérdidas por dispersión para correctamente ajustar datos experimentales de reflexión en películas delgadas.

En el Capítulo 2: Modelo Térmico se encara la resolución del problema térmico del calentamiento de una muestra con un haz modulado circular. En el Capítulo 3: Haces Astigmáticos se estudia el efecto que introduce el astigmatismo del haz de excitación y el haz de prueba en la señal de curvatura. Luego en el Capítulo 4: Dispositivo Experimental, se realiza un estudio exhaustivo del armado del instrumental, con las respectivas caracterizaciones de las componentes que lo forman. Además se discuten ventajas, desventajas, limitaciones y posibles futuras mejoras. En el Capítulo 5: Validación de la Técnica, se muestran mediciones realizadas sobre muestras conocidas que sirven como aval al método y permiten estudiar los alcances y las limitaciones del

mismo. Por último en el Capítulo 6: Conclusiones se resumen los puntos más importantes de la tesis. Se destacan tanto las ventajas, como las desventajas de la técnica experimental desarrollada. Para concluir se destacan las posibles mejoras que se pueden realizar para resolver algunos problemas encontrados y así mejorar aún más la técnica para futuras aplicaciones.



## **Capítulo 2:**

# **Modelo Térmico.**

En este capítulo se introducen y discuten conceptos teóricos que dan marco a los fenómenos experimentales estudiados. Primero se discute el problema térmico, resolviendo la ecuación de difusión del calor y luego se estudia la respuesta del material calculando la expansión térmica y la curvatura inducida en la superficie de la muestra [Balzarotti 2007, Landi 1999]. Luego se estudia el desenfoque de un haz Gaussiano debido a la reflexión sobre una superficie con un dado radio de curvatura. Además se estudia el flujo de calor en una muestra de 2 capas, con propiedades térmicas distintas.

Para poder cuantificar el desenfoque del haz se utiliza una señal denominada señal error de foco (FE) que se genera a partir de un haz astigmático y un detector de cuatro cuadrantes. Se discute la generación de la misma y los parámetros que cambian la sensibilidad de la señal. Por último, se estudia como repercute el desenfoque por curvatura en la señal error de foco y su implicancia en la cuantificación de parámetros térmicos.

### ***2.1 Problema térmico.***

Se asume que los perfiles de ambos haces, el de prueba y el de excitación, son Gaussianos (emisión en el modo TEM<sub>00</sub>). Dicha suposición se corrobora experimentalmente con ajustes Gaussianos bidimensionales de perfiles de intensidad de los haces tomadas con una cámara CCD. El principio de funcionamiento de la señal de

error de foco requiere de un haz de prueba astigmático o la introducción de astigmatismo en el sistema de detección, para así poder cuantificar el desenfoque del haz. En el caso de los cabezales de DVD utilizados en el dispositivo experimental, el astigmatismo está presente en los propios haces.

Primero se trabaja en la resolución del problema térmico para un haz de excitación circular. Luego, en el siguiente capítulo, se analizan y discuten los efectos del astigmatismo del haz de excitación en el problema térmico. Además se estudia el efecto que introduce el astigmatismo propio del haz de prueba en la señal medida.

Para un haz Gaussiano circular se puede escribir la densidad de potencia de como

$$I(x, y, t) = (I_c + I_\omega e^{i\omega t}) e^{-\frac{1}{2}\sigma^2(x^2+y^2)} \quad (2.1)$$

donde  $I_c$  e  $I_\omega$  son la parte continua y la parte oscilante de la densidad de potencia respectivamente,  $x$  y  $y$  son los ejes cartesianos y  $\sigma$  es el radio del haz para el cual la intensidad cae a  $e^{-1/2}$  de su valor máximo. De la expresión (2.1) se puede calcular la potencia total del haz integrando en todo el espacio, obteniendo

$$P(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} I(x, y, t) dx dy = P_c + P_\omega e^{i\omega t} = 2\pi\sigma^2 (I_c + I_\omega e^{i\omega t}) \quad (2.2)$$

donde  $P_c$  y  $P_\omega$  son la parte continua y la parte oscilante de la potencia respectivamente.

Para poder estudiar la respuesta térmica del material a un calentamiento externo, en este caso un haz de excitación modulado, es necesario primero hallar una expresión para la evolución temporal de la distribución de temperatura de la muestra,  $\theta(\vec{r}, t)$ , con  $\vec{r} = (x, y, z)$  donde  $z$  es la dirección de propagación de los haces. Se considera que la muestra es un sólido semi-infinito cuya superficie es plana y se encuentra en el plano  $z = 0$ , que la absorción de la luz dentro del material decae exponencialmente con la distancia y que la penetración óptica es mucho menor a la penetración térmica. Además se trabaja con coeficientes constantes, por lo cual la difusividad térmica  $D$  no depende de la temperatura. Bajo estos supuestos, se resuelve la ecuación de difusión del calor

$$\frac{\partial \theta}{\partial t}(\vec{r}, t) - D_i \nabla^2 \theta(\vec{r}, t) = \frac{Q(\vec{r}, t)}{\rho c_p} \quad (2.3)$$

donde  $\rho$  es la densidad de la muestra,  $c_p$  es el calor específico,  $D_i$  es la difusividad térmica en la dirección  $i$  y  $Q(\vec{r}, t)$  es la fuente de calor por unidad de tiempo y de volumen.

En el caso de que la fuente de calentamiento sea un haz láser de excitación, con un decaimiento exponencial, se tiene

$$Q(\vec{r}, t) = \frac{\eta_e \beta}{2} e^{-\beta z} I(x, y, t) \quad (2.4)$$

donde  $\beta$  es el coeficiente de absorción óptica del material a la longitud de onda del haz de excitación y  $\eta_e$  la eficiencia de conversión de luz en calor. La ecuación (2.3) se puede expandir utilizando la difusividad térmica radial  $D_r$  y vertical  $D_z$

$$\frac{\partial \theta}{\partial t}(\vec{r}, t) - D_r \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \theta(\vec{r}, t) - D_z \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2}(\vec{r}, t) = \frac{Q(\vec{r}, t)}{\rho c_p} \quad (2.5)$$

Dado que los materiales que se desean estudiar son opacos a la luz (en muestras transparentes se utiliza una película delgada de algún metal para aumentar la reflectividad y la absorción de la muestra), se puede resolver la ecuación de difusión del calor haciendo tender a infinito al coeficiente de absorción  $\beta$ , transformando la ecuación (2.5) en una ecuación homogénea, donde la fuente de calor (potencia absorbida por la muestra) se introduce como condición de borde. Dicha hipótesis de opacidad es conocida como muestra óptimamente gruesa. De esta manera, para un haz con igual potencia pico en continua y modulada a frecuencia  $\omega$  ( $P_c = P_\omega = P$ ), la solución a la ecuación (2.5) resulta [Landi 1999]

$$\theta(\vec{r}, t) = \frac{\eta_e \sqrt{D_r/D_z}}{(2\pi)^2 \kappa_r} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ \frac{e^{-k_z \sqrt{D_r/D_z}}}{k} + \frac{e^{-z \sqrt{(D_r k^2 + i\omega)/D_z}}}{\sqrt{k^2 + i \frac{\omega}{D_r}}} e^{i\omega t} \right] e^{-i(k_x x + k_y y)} P e^{-\frac{1}{2}\sigma^2(k_x^2 + k_y^2)} dk_x dk_y \quad (2.6)$$

donde  $\kappa_r$  es la conductividad térmica radial, el primer término del corchete se corresponde con la respuesta estacionaria y el segundo la respuesta dependiente del tiempo. El término  $P e^{-\frac{1}{2}\sigma^2(k_x^2 + k_y^2)}$  no es más que la transformada espacial de Fourier de la intensidad del haz  $I(x, y, t)|_{P_c=P_\omega}$ .

La resolución en el caso en que la potencia pico en continua difiere de la potencia modulada a frecuencia  $\omega$ , se logra aplicando la transformada espacial de Fourier a la ecuación (2.1)

$$\begin{aligned}
F(k_x, k_y) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} I(x, y, t) \cdot e^{-i(k_x x + k_y y)} dx dy \\
F(k_x, k_y) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} (I_c + I_\omega e^{i\omega t}) \cdot e^{-\frac{1}{2}(x^2/\sigma^2 + y^2/\sigma^2)} e^{-i(k_x x + k_y y)} dx dy \\
F(k_x, k_y) &= (P_c + P_\omega e^{i\omega t}) \cdot e^{-\frac{1}{2}(k_x^2 \sigma^2 + k_y^2 \sigma^2)}
\end{aligned} \tag{2.7}$$

Luego aplicando el resultado de la transformada en la ecuación (2.6) se obtiene

$$\theta(\vec{r}, t) = \frac{\eta_e \sqrt{D_r/D_z}}{(2\pi)^2 \kappa_r} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ P_c \frac{e^{-k_z \sqrt{D_r/D_z}}}{k} + P_\omega \frac{e^{-z \sqrt{(D_r k^2 + i\omega)/D_z}}}{\sqrt{k^2 + i \frac{\omega}{D_r}}} e^{i\omega t} \right] e^{-i(k_x x + k_y y)} e^{-\frac{1}{2}(k_x^2 + k_y^2) \sigma^2} dk_x dk_y \tag{2.8}$$

La solución obtenida corresponde a la evolución temporal de la distribución de temperatura del material inducida por un haz láser circular como fuente de excitación. Por lo tanto la distribución de temperatura posee un término continuo y un término modulado a frecuencia  $\omega$ , producto de la modulación del haz de excitación

$$\theta(\vec{r}, t) = \theta_c(\vec{r}) + \theta_\omega(\vec{r}) e^{i\omega t} \tag{2.9}$$

Para simplificar la expresión de la distribución de temperatura, se adimensionalizan las coordenadas (ecuación (2.10.1)) y se realizan dos cambios de coordenadas (ecuaciones (2.10.2) y (2.10.3), donde esta última corresponde a un cambio a variables polares).

$$x' = \frac{x}{\sqrt{2}\sigma}; y' = \frac{y}{\sqrt{2}\sigma} \tag{2.10.1}$$

$$\begin{cases} s = \frac{k_x \sigma}{\sqrt{2}} \\ v = \frac{k_y \sigma}{\sqrt{2}} \end{cases} \tag{2.10.2}$$

$$\begin{cases} s = \sqrt{u} \cos \Phi \\ v = \sqrt{u} \sin \Phi \end{cases} \tag{2.10.3}$$

Dado que es de interés saber que sucede sobre la superficie de la muestra, se evalúa la solución de la ecuación (2.8) en  $z=0$  y se utiliza el vector de coordenadas adimensional  $\vec{r}' = (x', y')$  donde la coordenada  $z$  no aparece dado que ya fue evaluada

en  $z = 0$ , obteniendo una expresión para el término modulado de la distribución de temperatura sobre la superficie de la muestra

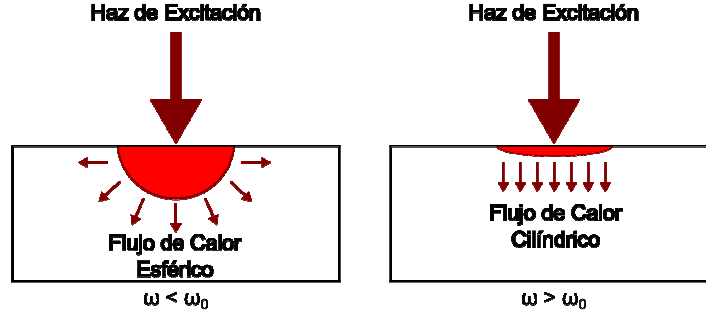
$$\theta_{\omega}(\vec{r}') = A_{\theta} \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \frac{e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x'\cos\Phi + y'\sin\Phi)}}{\left[u + i\frac{\omega}{\omega_0}\right]^{1/2}} d\Phi du \quad (2.11.1)$$

$$\omega_0 = \frac{2D_r}{\sigma^2} \quad (2.11.2)$$

$$A_{\theta} = \frac{\eta_e \sqrt{D_r / D_z}}{(2\pi)^2 \kappa_r} \frac{\sqrt{2}}{\sigma} P_{\omega} \quad (2.11.3)$$

donde  $\omega_0$  se denomina frecuencia de corte. Para calcular la distribución de temperatura sobre la superficie de la muestra debido a la componente continua del haz láser de excitación, alcanza con utilizar  $\omega = 0$  en la ecuación (2.11.1) y reemplazar  $P_{\omega}$  por  $P_c$  en la ecuación (2.11.3).

La estrategia propuesta para caracterizar la difusividad térmica de un material, requiere un análisis espectral realizando barridos en frecuencia de una señal proporcional a la inversa del radio de curvatura de la deformación superficial (señal FE) y así hallar la frecuencia de corte  $\omega_0$ . Dicha frecuencia representa un punto de inflexión entre dos situaciones límites de la difusión del calor en la muestra: a baja frecuencia,  $\omega < \omega_0$ , la transmisión del calor es tridimensional con una simetría esférica; a alta frecuencia,  $\omega > \omega_0$ , la transmisión del calor es bidimensional con simetría cilíndrica. La longitud de penetración térmica,  $d = \sqrt{D\tau}$  donde  $\tau$  es el periodo de la modulación, es grande a frecuencias bajas y no se observan cambios en la fase de la temperatura. En cambio, a frecuencias altas, la penetración  $d$  es pequeña y aparece un desfase de  $-\pi/4$ . En la figura 2.1 se puede observar un esquema del comportamiento térmico a baja y alta frecuencia.



**Figura 2.1:** Esquema del flujo de calor para dos casos límites:  $\omega < \omega_0$ , la longitud de penetración térmica es grande y el flujo tiene una simetría esférica (flujo en volumen);  $\omega > \omega_0$ , el flujo de calor tiene una simetría cilíndrica (flujo plano).

## 2.2 Termorefectancia.

En los fotodiodos del detector de cuatro cuadrantes (dentro de los cabezales de DVD y usados para generar la señal de error de foco) llega la reflexión del haz de prueba sobre la superficie de la muestra, que a pesar de ser un láser continuo poseerá una señal modulada a la frecuencia  $\omega$  del haz de excitación. Dicha modulación proviene de la variación temporal del coeficiente de reflectividad de la muestra,  $\tilde{R}(\vec{r}, t)$ , inducida por el término modulado de la distribución de temperatura,  $\theta(\vec{r}, t)$ . Si se asume que la reflectividad de la muestra es uniforme en la zona donde incide el haz de prueba, la potencia reflejada del haz se puede escribir como

$$P_{ref} = P_{inc} \cdot \tilde{R}(\vec{r}_{Prueba}, t) \quad (2.12)$$

donde  $P_{inc}$  es la potencia con la cual incide el haz de prueba, y  $\vec{r}_{Prueba} = (x_{Prueba}, y_{Prueba})$  es la posición del centro del haz de prueba. Para las potencias de excitación utilizadas, se esperan cambios pequeños en la temperatura de la muestra, por lo cual se puede realizar un desarrollo en serie de Taylor de la reflectividad

$$\tilde{R}(\vec{r}_{Prueba}, t) = \tilde{R}(\theta_c(\vec{r}_{Prueba})) + \left. \frac{dR}{d\theta} \right|_{\theta=\theta_c} \theta_\omega(\vec{r}_{Prueba})|_{z=0} e^{i\omega t} + \dots \quad (2.13)$$

De esta manera usando los resultados obtenidos en (2.12) y (2.13), se puede escribir la amplitud de la parte modulada de la frecuencia reflejada en la muestra como

$$P_{ref}|_{\omega} = P_{inc} \left. \frac{d\tilde{R}}{d\theta} \right|_{\theta=\theta_c} \theta_{\omega}(\vec{r}_{Prueba})|_{z=0} \quad (2.14)$$

Por lo tanto, midiendo la potencia reflejada en la muestra en un fotodiodo, se puede caracterizar la componente modulada de la temperatura en el punto de incidencia del haz de prueba. Reemplazando la expresión de la ecuación (2.11), se obtiene una expresión completa para la modulación por reflexión, o termoreflectancia

$$P_{ref}|_{\omega} = A_{\tilde{R}} f(\omega/\omega_0) \quad (2.15.1)$$

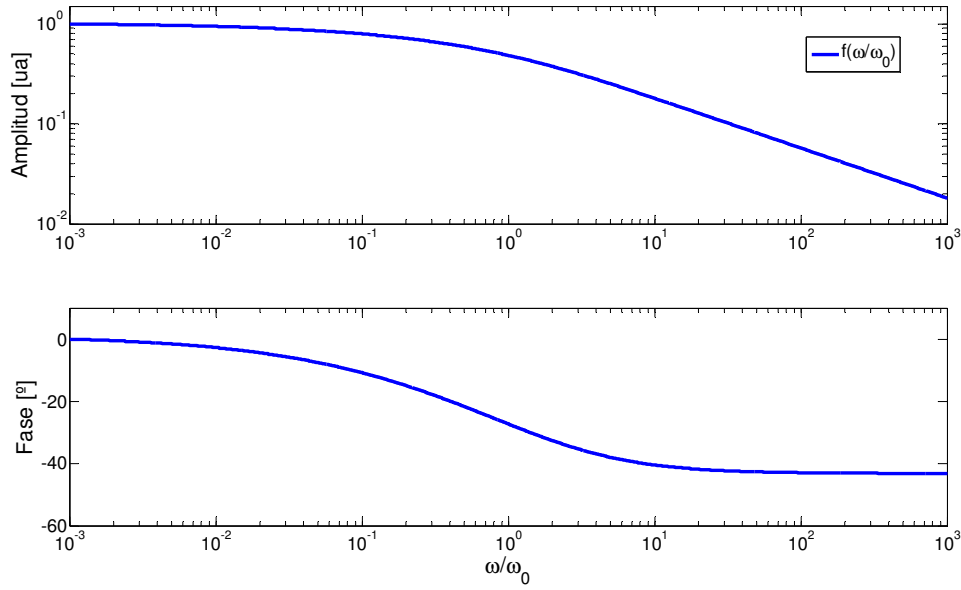
$$A_{\tilde{R}} = P_{inc} \left. \frac{d\tilde{R}}{d\theta} \right|_{\theta=\theta_c} \frac{\eta_e \sqrt{D_r / D_z} \sqrt{2}}{(2\pi)^2 \kappa_r \sigma} P_{\omega} \quad (2.15.2)$$

$$f(\omega/\omega_0) = \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \frac{e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x'\cos\Phi + y'\sin\Phi)}}{\left[ u + i \frac{\omega}{\omega_0} \right]^{1/2}} d\Phi du \quad (2.15.3)$$

En el centro del haz de excitación ( $x' = y' = 0$ ) la ecuación (2.15.3) se reduce a

$$f(\omega/\omega_0)|_{x'=y'=0} = 2\pi \int_0^{\infty} \frac{e^{-u}}{\left[ u + i \frac{\omega}{\omega_0} \right]^{1/2}} du \quad (2.16)$$

En la figura 2.2 se puede ver un cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.16) en función de  $\omega/\omega_0$ , o sea, la respuesta en frecuencia de la termoreflectancia. Se observa que para altas frecuencias ( $\omega > \omega_0$ ) la amplitud tiene una pendiente de -1/2 en escala logarítmica y que la fase tiende a  $\pi/4$ .



**Figura 2.2:** Respuesta en frecuencia de la señal de termorefectancia para un haz Gaussiano circular y en el centro del haz ( $x' = y' = 0$ ). La curva graficada corresponde al cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.16).

### 2.3 Expansión Térmica.

Además de la modulación en la reflectividad de la muestra (término de termorefectancia) existe otra respuesta térmica del material al calentamiento producido por el haz de excitación. Dicha respuesta es una deformación en la región donde incide el haz que se denomina expansión térmica. La deformación del material ocurrirá tanto en la dirección radial como en la dirección vertical, por lo cual un punto  $\vec{r}_0 = (x_0, y_0, 0)$  pasará a tener coordenadas  $\vec{r} = (x, y, z)$  luego de la expansión térmica. Se puede calcular el vector de desplazamientos,  $\vec{\delta} = (\delta_x, \delta_y, \delta_z)$ , usando la ley de expansión para cada coordenada

$$\delta_x(\vec{r}, t) = x - x_0 = \lambda_x \int_{-\infty}^{x_0} \theta(\vec{r}, t) dx \quad (2.17.1)$$

$$\delta_y(\vec{r}, t) = y - y_0 = \lambda_y \int_{-\infty}^{y_0} \theta(\vec{r}, t) dy \quad (2.17.2)$$

$$\delta_z(\vec{r}, t) = z - 0 = \lambda_z \int_{-\infty}^0 \theta(\vec{r}, t) dz \quad (2.17.3)$$



donde  $\lambda_i$  es el coeficiente de expansión lineal en la dirección  $i$  y la temperatura  $\theta(\vec{r}, t)$  es la expresión de la ecuación (2.8). Las deformaciones en el plano  $xy$  se pueden estimar calculando las derivadas  $dx/dx_0$  y  $dy/dy_0$  a partir de las ecuaciones (2.17.1) y (2.17.2) respectivamente

$$\frac{dx}{dx_0} = 1 + \frac{d\delta_x}{dx_0} = 1 + \lambda_x \frac{d}{dx_0} \int_0^{x_0} \theta(\vec{r}, t) dx = 1 + \lambda_x \theta(\vec{r}, t) \Big|_{\vec{r}_0} \quad (2.18)$$

En metales, el coeficiente de expansión lineal,  $\lambda_i$ , esta en el orden de  $10^{-5} K^{-1}$ , por lo cual la expansión en la dirección  $x$ , resulta despreciable

$$\frac{dx}{dx_0} \approx 1 \Rightarrow x \approx x_0 \quad (2.19)$$

El argumento es análogo en la dirección  $y$ , por lo que solo se trabaja con la expansión  $\delta_z(\vec{r}, t)$ . Dado que la expansión térmica se calcula a partir de la temperatura, también se puede separar en una componente continua y una modulada

$$\delta_z(\vec{r}, t) = \delta_z(\vec{r}) \Big|_c + \delta_z(\vec{r}) \Big|_\omega e^{i\omega t} \quad (2.20)$$

donde el término modulado se obtiene a partir de la parte modulada de la temperatura

$$\delta_z(\vec{r}) \Big|_\omega = \lambda_z \int_{-\infty}^0 \theta_\omega(\vec{r}) dz \quad (2.21)$$

Reemplazando  $\theta_\omega(\vec{r})$  de la ecuación (2.11) en la ecuación (2.21) se obtiene

$$\delta_z(\vec{r}) \Big|_\omega = \lambda_z \frac{\eta_e \sqrt{D_r/D_z}}{(2\pi)^2 \kappa_r} P_\omega \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-i(k_x x + k_y y)} e^{-\frac{1}{2}(k_x^2 + k_y^2)\sigma^2}}{\sqrt{k^2 + i\frac{\omega}{D_r}}} dk_x dk_y \left[ \int_0^\infty e^{-z\sqrt{(D_r k^2 + i\omega)/D_z}} dz \right] \quad (2.22)$$

Resolviendo la integral en  $z$  se obtiene una expresión para la expansión térmica modulada que solo depende de las coordenadas en el plano

$$\delta_z(x, y) \Big|_\omega = \lambda_z \frac{\eta_e}{(2\pi)^2 \kappa_r} P_\omega \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-i(k_x x + k_y y)} e^{-\frac{1}{2}(k_x^2 + k_y^2)\sigma^2}}{k^2 + i\frac{\omega}{D_r}} dk_x dk_y \quad (2.23)$$

Por último, aplicando las transformaciones de las ecuaciones (2.10), se llega a la expresión final para la expansión térmica modulada, consecuencia directa del cambio de temperatura en la muestra inducido por un haz de excitación modulado

$$\delta_z(x', y') \Big|_\omega = A_{\delta_z} g(\omega/\omega_0) \quad (2.24.1)$$

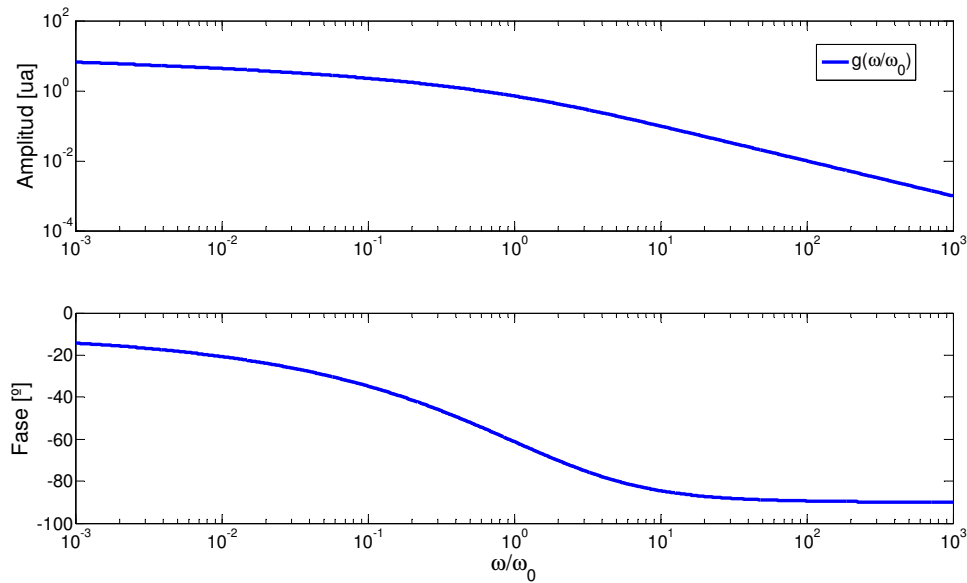
$$A_{\delta_z} = \frac{\eta_e \lambda_z P_\omega}{(2\pi)^2 \kappa_r} \quad (2.24.2)$$

$$g(\omega/\omega_0) = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x'\cos\Phi + y'\sin\Phi)}}{\left[u + i\frac{\omega}{\omega_0}\right]} d\Phi du \quad (2.24.3)$$

En el centro del haz de excitación ( $x' = y' = 0$ ) la ecuación (2.24.3) se reduce a

$$g(\omega/\omega_0)\Big|_{x'=y'=0} = 2\pi \int_0^\infty \frac{e^{-u}}{\left[u + i\frac{\omega}{\omega_0}\right]} du \quad (2.25)$$

En la figura 2.3 se puede ver un cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.25) en función de  $\omega/\omega_0$ , o sea, la respuesta en frecuencia de la expansión térmica. Se observa que para altas frecuencias ( $\omega > \omega_0$ ) la amplitud tiene una pendiente de -1 en escala logarítmica y que la fase tiende a  $-\pi/2$ . La fase, para  $\omega \ll \omega_0$  arranca en un valor de aproximadamente  $-14^\circ$  y tiende a  $-90^\circ$  para  $\omega \gg \omega_0$ , obteniendo una diferencia de fase de  $76^\circ$  en todo el barrido en frecuencia.



**Figura 2.3:** Respuesta en frecuencia de la señal de expansión térmica para un haz Gaussiano circular y en el centro del haz ( $x' = y' = 0$ ). La curva graficada corresponde al cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.25).

## 2.4 Curvatura.

La técnica de medición propuesta consiste en enfocar un haz de prueba sobre la superficie de la muestra y medir el desenfoque del mismo debido a la respuesta térmica

del material. La expansión térmica de la muestra genera un desenfoque en el haz de prueba tanto porque la superficie sobre la cual se refleja el haz se desplaza en el eje z, como por la curvatura de la expansión que cambia el plano focal del haz de manera análoga a un espejo convexo (ver sección 2.6 Desenfoque por curvatura).

Para hallar la curvatura (el radio de curvatura  $R$ ) se requiere calcular la derivada segunda de la expansión térmica de la muestra en la dirección radial  $\hat{r}$ , evaluada en el centro. Para ello hace falta realizar un cambio a coordenadas polares

$$\begin{cases} x' = \frac{r}{\sqrt{2}\sigma} \cos \varphi \\ y' = \frac{r}{\sqrt{2}\sigma} \sin \varphi \end{cases} \quad (2.26)$$

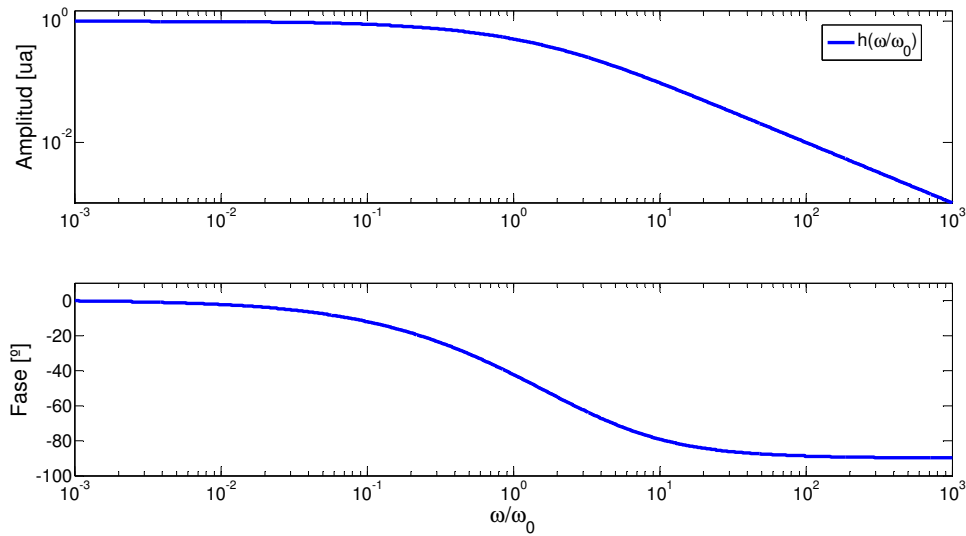
Luego, utilizando el cambio de coordenadas de la ecuación (2.26) en las ecuaciones de la expansión térmica (2.24), se obtiene la inversa del radio de curvatura

$$\frac{1}{R} = \left. \frac{\partial^2 \delta_z(x, y)}{\partial r^2} \right|_{r=\varphi=0} = A_R h(\omega/\omega_0) \quad (2.27.1)$$

$$A_R = -\frac{\eta_e \lambda_z P_\omega}{2\pi \kappa_r \sigma^2} \quad (2.27.2)$$

$$h(\omega/\omega_0) = \int_0^\infty \frac{u e^{-u}}{\left[ u + i \frac{\omega}{\omega_0} \right]} du \quad (2.27.3)$$

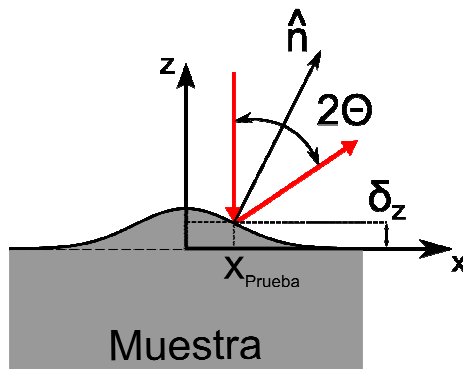
La curva de la figura 2.4 muestra el cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.27.3) en función de  $\omega/\omega_0$ , o sea, la respuesta en frecuencia de la inversa del radio de curvatura (curvas normalizadas a valor en  $\omega/\omega_0 = 10^{-3}$ ). Se observa que para altas frecuencias ( $\omega > \omega_0$ ) la amplitud tiene una pendiente de -1 en escala logarítmica y que la fase cambia de 0 a  $-\pi/2$  en todo el barrido en frecuencia.



**Figura 2.4:** Respuesta en frecuencia de la señal de curvatura para un haz Gaussiano circular y en el centro del haz ( $x' = y' = 0$ ). La curva graficada corresponde al cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.27.3).

## 2.5 Deflexión.

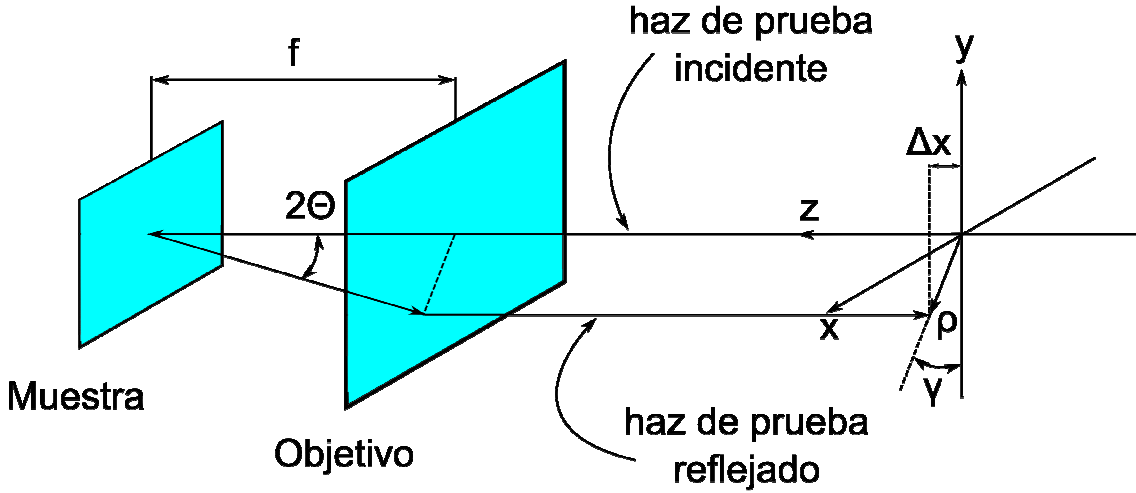
Al incidir con un haz de prueba sobre la superficie, deformada por la expansión térmica, el mismo sufre una deflexión. El ángulo de dicha deflexión, siguiendo la ley de la reflexión, no es más que el doble del ángulo de incidencia respecto a la normal de la superficie en el punto de incidencia,  $2\Theta$  (ver figura 2.5).



**Figura 2.5:** Deflexión del haz de prueba en un ángulo de  $2\Theta$  al reflejarse sobre una superficie deformada por la expansión térmica inducida.

Para poder cuantificar cuanto se desvía el haz como consecuencia de no incidir de forma normal a la superficie, se debe tener en cuenta que un objetivo de microscopio enfoca

los haces sobre la muestra a una distancia del mismo de  $f$  (distancia de trabajo del objetivo) (ver figura 2.6).



**Figura 2.6:** Deflexión del haz de prueba al reflejarse sobre la muestra. El haz se desvía una magnitud  $\rho$  y un ángulo  $\gamma$ .

Después del objetivo, el haz de prueba reflejado se desvía una distancia  $\rho$  respecto al centro del haz de prueba incidente,

$$\rho = f \tan(2\Theta) \approx 2z_f \Theta \quad (2.28)$$

donde se utiliza la aproximación de la tangente para pequeños ángulos. De esta manera se puede calcular la deflexión en la dirección del eje  $x$  y del eje  $y$ , donde ambas pueden ser calculadas usando las señales del detector de cuatro cuadrantes. Solo se muestra la deducción para la deflexión en el eje  $x$ , ya que la del eje  $y$  se puede resolver de forma análoga.

La contribución de la deflexión total  $\rho$  al eje  $x$  se puede escribir como

$$\Delta x = \rho \cos \gamma \approx 2f\Theta \cos \gamma \quad (2.29)$$

Hace falta determinar el versor normal a la superficie de la muestra,  $\hat{n}$ , para poder relacionar el ángulo  $\Theta$  con la deformación de la superficie. Se define una función implícita de la superficie

$$S(x, y) = z - s(x, y) \quad (2.30)$$

donde  $s(x, y)$  es tal que los puntos pertenecientes a la superficie se pueden escribir como  $(x, y, s(x, y))$ . A su vez, la función  $s(x, y)$  se relaciona con la expansión térmica

$\delta_z(x', y')$  a través de un cambio de variables que relacionan las coordenadas. El versor normal  $\hat{n}$  resulta

$$\hat{n} = \frac{\vec{\nabla}S}{|\vec{\nabla}S|} = \frac{-s_x \hat{x} - s_y \hat{y} + \hat{z}}{(s_x^2 + s_y^2 + 1)^{1/2}} \quad (2.31)$$

donde  $s_x$  y  $s_y$  son las derivadas parciales de  $s(x, y)$  con respecto a  $x$  e  $y$ , respectivamente. Dichas derivadas parciales se pueden expresar, en coordenadas esféricas y para valores pequeños de  $\Theta$ , como

$$\begin{cases} 1 = |\vec{\nabla}S| \cos \Theta \approx |\vec{\nabla}S| \\ -s_x = |\vec{\nabla}S| \sin \Theta \cos \gamma \approx \Theta \cos \gamma \\ -s_y = |\vec{\nabla}S| \sin \Theta \sin \gamma \approx \Theta \sin \gamma \end{cases} \quad (2.32)$$

Usando la ecuación (2.29) y la ecuación (2.32), se logra expresar la deflexión en el eje  $x$  en función de la deformación de la muestra

$$\Delta x \approx -2s_x f \quad (2.33)$$

Usando las transformaciones de (2.10) permite escribir la derivada parcial  $s_x$  como

$$s_x = \frac{\partial \delta_z}{\partial x} = \frac{\partial \delta_z}{\partial x'} \frac{\partial x'}{\partial x} = \frac{1}{\sqrt{2\sigma}} \frac{\partial \delta_z}{\partial x'} \quad (2.34)$$

Evaluando la derivada de la ecuación (2.34) para el término modulado a frecuencia  $\omega$  y usando la ecuación (2.24), se obtiene

$$s_x = \frac{-2i}{\sqrt{2\sigma}} A_{\delta_z} \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \frac{\sqrt{u} e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x' \cos \Phi + y' \sin \Phi)}}{[u + i \frac{\omega}{\omega_0}]} \cos \Phi d\Phi du \quad (2.35)$$

Por último, de la ecuación (2.33) y (2.35), se expresa la deflexión en el eje  $x$  como

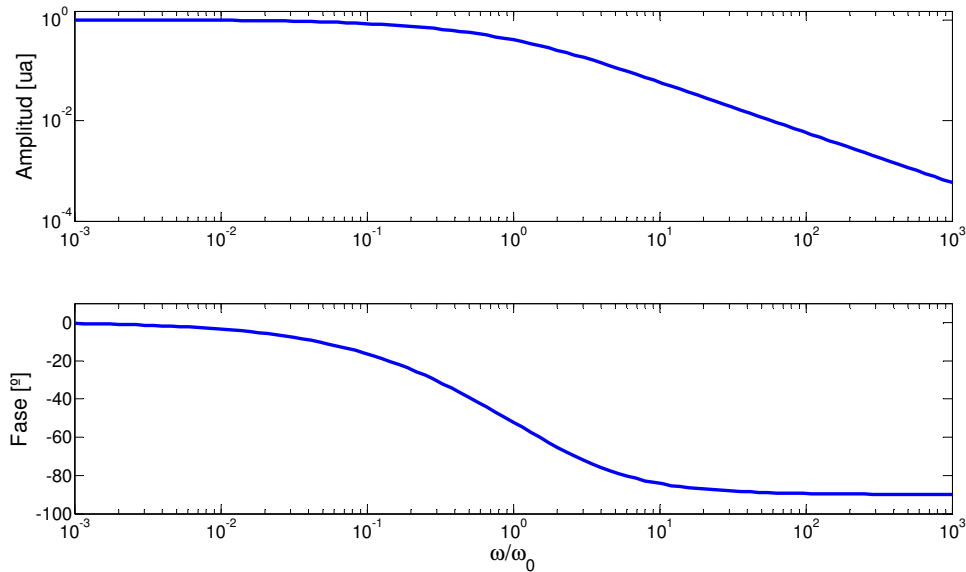
$$\Delta x \approx A_D \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \frac{\sqrt{u} e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x' \cos \Phi + y' \sin \Phi)}}{[u + i \frac{\omega}{\omega_0}]} \cos \Phi d\Phi du \quad (2.36.1)$$

$$A_D = -i \frac{f}{\sqrt{2\sigma}} \frac{\eta_e \lambda_z P_\omega}{\pi^2 \kappa_r} \quad (2.36.2)$$

De forma análoga, se puede resolver la deflexión en el eje  $y$ , para el cual se obtiene

$$\Delta y \approx A_D \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \frac{\sqrt{u} e^{-u} e^{-2i\sqrt{u}(x' \cos \Phi + y' \sin \Phi)}}{[u + i \frac{\omega}{\omega_0}]} \sin \Phi d\Phi du \quad (2.37)$$

La curva de la figura 2.7 muestra el cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.36.1) para las coordenadas  $x'=1$  e  $y'=0$  (corresponde a un descentrado de  $\sqrt{2}\sigma$  en el eje  $x$ ) en función de  $\omega/\omega_0$ , o sea, la respuesta en frecuencia de la deflexión. Tanto la amplitud como la fase están normalizada al valor en  $\omega/\omega_0 = 10^{-3}$ . Se observa que para altas frecuencias ( $\omega > \omega_0$ ) la amplitud tiene una pendiente de -1 en escala logarítmica y que la fase cambia de 0 a  $-\pi/2$  en todo el barrido en frecuencia.



**Figura 2.7:** Respuesta en frecuencia de la señal de deflexión para un haz Gaussiano circular y en las coordenadas  $x'=1$  e  $y'=0$ . La curva graficada corresponde al cálculo numérico de la integral de la ecuación (2.36.1).

## 2.6 Desenfoque por curvatura.

Si los haces de excitación y de prueba son colineales, no existe término de deflexión y, como se verá en esta sección, el principal responsable del desenfoque del haz es la curvatura térmicamente inducida sobre la superficie. Por ende, se desea cuantificar el corrimiento del foco de un haz Gaussiano debido a la introducción de una curvatura de radio  $R$  en el plano focal del haz.

Para un haz Gaussiano, el radio de curvatura del frente de onda  $R(z)$  y el ancho del haz  $w(z)$  se pueden expresar en función de la coordenada espacial  $z$

$$R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{z_0}{z} \right)^2 \right] \quad (2.38)$$

$$w(z) = w_0 \left[ 1 + \left( \frac{z_0}{z} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (2.39)$$

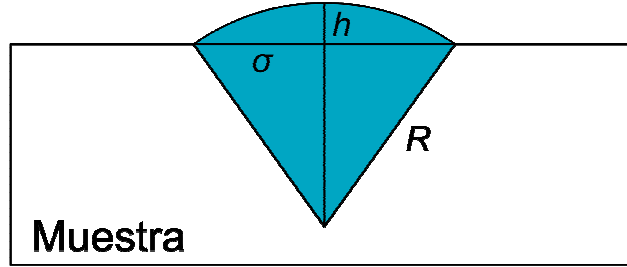
donde  $z_0 = \pi w_0^2 / \lambda$  es conocido como el rango de Rayleigh y  $w_0$  es la cintura del haz en el foco. Trabajando ambas ecuaciones es posible obtener una expresión para el desenfoque,  $z$ , en función de  $R(z)$  y  $w(z)$  (o en función de  $R(z)$  y  $z_0$ )

$$z = \frac{w^4 R}{w^4 + \left( \frac{\lambda}{\pi} \right)^2 R^2} = \frac{z_0^2 \sqrt{1 + (z/z_0)^2}}{\frac{z_0^2}{R} \sqrt{1 + (z/z_0)^2} + R^2} \quad (2.40)$$

Expansiones térmicas chicas producen radios de curvatura grandes. En el límite  $z_0 \ll R$ , la expresión del desenfoque (ecuación (2.40)), que ahora se denota como  $\Delta f$ , se simplifica a

$$\Delta f \xrightarrow{z_0 \ll R} \frac{z_0^2}{R} \quad (2.41)$$

En la figura 2.8 se observa un esquema de una superficie que sufre una expansión térmica con una altura máxima de  $h$  y un radio de curvatura  $R$ , inducida por un haz de tamaño  $\sigma$ .



**Figura 2.8:** Esquema de una superficie que se expande térmicamente debido al calor inducido por un haz de tamaño  $\sigma$ . La expansión térmica  $h$ , posee un radio de curvatura  $R$ .

La expansión  $h$  se puede calcular en función de  $R$  y  $\sigma$  usando el teorema de Pitágoras. Luego usando una expansión de Taylor en  $\sigma/R \ll 1$ , se simplifica la expresión a

$$h = R - (R^2 - \sigma^2)^{1/2} \Rightarrow h \approx \sigma^2 / 2R \quad (2.42)$$

De esta manera, usando el resultado de la ecuación (2.42) se puede reescribir la aproximación  $z_0 \ll R$ , como  $h \ll \lambda$ . Se puede estimar el valor de  $h$  para el caso de una



muestra de bismuto (Bi) y para un cubreobjetos de vidrio BK7 con un recubrimiento de platino (Pt), calculando el prefactor  $A_R$  de la ecuación (2.27.2).

Para el cálculo es necesario estimar la eficiencia de conversión de luz en calor,  $\eta_e$ , para ambas muestras. En el caso del Bi, se incide sobre la muestra con el haz de excitación con un ángulo de incidencia chico y se mide la potencia de luz incidente y la reflejada, asumiendo que el resto es mayormente absorción (despreciando efectos de dispersión). En el caso del cubreobjetos con Pt, se utiliza una muestra con un recubrimiento de Pt de  $(11 \pm 2)$  nm y se mide la potencia incidente, reflejada y transmitida, de manera de obtener el valor de potencia absorbida, despreciando efectos de dispersión. Las eficiencias resultan  $\eta_e|_{Bi} = 0.41$  y  $\eta_e|_{Pt} = 0.43$ .

Utilizando la ecuación del prefactor de la expansión térmica (2.27.2) y con valores tabulados de coeficiente de expansión y conductividad térmica para ambos materiales, se estima el valor de  $h$  por unidad de  $P_\omega$  (deformación por  $mW$  de potencia modulada). En el caso del Bi, se obtiene  $h_{Bi}/P_\omega \approx 55 \text{ pm}/mW$  y para el BK7 con la película delgada de Pt  $h_{BK7}/P_\omega \approx 218 \text{ pm}/mW$ . En ambos casos se cumple la condición de que  $h \ll \lambda$ , ya que la longitud de onda del haz de prueba es de aproximadamente 658 nm y las potencias utilizadas en todos los experimentos son menores a los 18 mW.

El haz de prueba se desenfoca tanto por la expansión térmica de la muestra como por el efecto de la curvatura de la superficie explicado en esta sección. Resulta de suma utilidad calcular el cociente entre dichos fenómenos para tener noción de la contribución de cada uno de ellos al desenfoco total. Utilizando las ecuaciones (2.24), (2.27) y (2.41), se puede calcular el cociente entre el desenfoco por la curvatura de la superficie y la expansión térmica de la misma

$$\left. \frac{\Delta f}{\delta_z} \right|_\omega = \frac{A_R h(\omega/\omega_0)}{A_{\delta_z} g(\omega/\omega_0)} = 16\pi^2 \left( \frac{\sigma_{prueba}}{\sigma_{exc}} \right)^2 \left( \frac{\sigma_{prueba}}{\lambda_{prueba}} \right)^2 \frac{h(\omega/\omega_0)}{g(\omega/\omega_0)} \quad (2.43)$$

donde  $\sigma_{prueba}$  y  $\sigma_{exc}$  son los tamaños del haz de prueba y de excitación respectivamente (recordar que  $w = 2\sigma$ ). La expresión de la ecuación (2.45) es independiente de los parámetros térmicos de la muestra, por lo cual vale para cualquier material. Para el caso

particular de un haz enfocado al limite de difracción ( $\sigma_{prueba} \approx \lambda_{prueba}/2$ ), considerando que ambos haces poseen el mismo tamaño ( $\sigma_{prueba} = \sigma_{exc}$ ) y para una frecuencia  $\omega = \omega_0$ , donde  $h(1)/g(1) \approx 0.7$  se obtiene un cociente de  $(\Delta f/\delta_z)|_{\omega} \approx 28$ . Por lo tanto, el efecto de desenfoque por curvatura es 28 veces mayor al efecto de desenfoque por expansión térmica de la superficie.

En el caso particular del experimento propuesto, el haz de prueba posee una longitud de onda de  $\lambda_{prueba} = 658nm$  y se enfoca a  $\sigma_{prueba} \approx 4\mu m$ , obteniendo de esta manera un cociente entre el desenfoque por curvatura y la expansión térmica de  $(\Delta f/\delta_z)|_{\omega} \approx 5800$  (donde se considera que ambos haces poseen el mismo tamaño,  $\sigma_{prueba} = \sigma_{exc}$ ). Dado que el efecto de desenfoque por curvatura es más que tres ordenes mayor al efecto de desenfoque por expansión térmica, solo se considera para ajustar los datos experimentales, la respuesta en frecuencia de la curvatura de la superficie. El ajuste permite extraer la frecuencia de corte  $\omega_0 = 2D_r/\sigma^2$ , que conjuntamente con la medición del tamaño del haz de excitación permite obtener un valor para la difusividad térmica de la muestra.

## 2.7 Flujo de calor.

El flujo de calor en una muestra que sufre un gradiente de temperatura  $\nabla T$  se puede calcular como

$$\dot{Q} = \kappa A \nabla T = \frac{\kappa A \Delta T}{\rho} \quad (2.44)$$

donde  $\kappa$  es la conductividad térmica,  $A$  es el área por el cual se propaga el calor,  $\Delta T$  es la diferencia de temperatura en la muestra (se asume igual para ambas capas) y  $\rho$  es el radio asociado al área  $A$ . Para una muestra donde la primera capa es una película delgada de espesor  $a$ , se asume que el flujo de calor por la misma será en forma cilíndrica. Para el sustrato, la forma del flujo de calor dependerá de la frecuencia de la fuente que lo genera, pasando de un flujo con simetría esférica (flujo en volumen) a baja frecuencia ( $\omega < \omega_0$ ), a un flujo con simetría cilíndrica (flujo plano) a alta frecuencia

( $\omega > \omega_0$ ) (ver figura 2.2). El radio  $\rho$  se obtiene a partir de la ecuación de la longitud de penetración térmica  $d = \sqrt{D\tau} = \sqrt{2\pi D / \omega}$ .

Primero se analiza el caso  $\omega < \omega_0$ , donde el flujo de calor es plano (simetría cilíndrica) en la primera capa y en volumen (simetría esférica) en el sustrato (el subíndice 1 se refiere a la película delgada, mientras que el subíndice 2 se refiere al sustrato)

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_1 = \rho_2 = \sqrt{2\pi D / \omega} \\ A_1 = 2\pi \sqrt{2\pi D / \omega} \cdot a \\ A_2 = 2\pi \left( \sqrt{2\pi D / \omega} \right)^2 \\ \left. \frac{\dot{Q}_1}{\dot{Q}_2} \right|_{\omega < \omega_0} = \frac{\kappa_1 a}{\kappa_2 \sqrt{2\pi D / \omega}} < \frac{\kappa_1 a}{\kappa_2 \sigma} \end{array} \right. \quad (2.45)$$

En el caso  $\omega > \omega_0$ , donde el flujo de calor es plano (simetría cilíndrica) en la primera capa y en el sustrato, se obtiene

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_1 = \sigma \\ \rho_2 = \sqrt{2\pi D / \omega} \\ A_1 = 2\pi \sigma \cdot a \\ A_2 = 2\pi \sigma \sqrt{2\pi D / \omega} \\ \left. \frac{\dot{Q}_1}{\dot{Q}_2} \right|_{\omega > \omega_0} = \frac{\kappa_1 a}{\kappa_2 \sigma} \end{array} \right. \quad (2.46)$$

donde  $\sigma$  es el tamaño del haz de excitación. En ambos casos, bajas y altas frecuencias, el flujo de calor entre la película delgada y el sustrato depende del cociente de las conductividades térmicas y del cociente entre el espesor de la película y el tamaño del haz de excitación. Esto permite escribir el cociente del flujo de calor entre ambas capas para toda frecuencia como

$$\frac{\dot{Q}_1}{\dot{Q}_2} \leq \frac{\kappa_1 a}{\kappa_2 \sigma} \quad (2.47)$$

Cabe aclarar que en el modelo presentado no se tiene en cuenta el flujo de calor que se propaga por el aire. Aunque la difusividad del aire es alta en comparación a las muestras estudiadas,  $D_{aire} = 0.22 \text{ cm}^2 / \text{s}$ , se puede estimar el flujo de calor para el aire usando

$$\dot{Q} = h_{aire} A \Delta T \quad (2.48)$$

donde  $h_{aire}$  es el coeficiente de transferencia de calor del aire. Comparando el flujo en el aire y en, por ejemplo, una muestra de bismuto para un área calentada de tamaño del tamaño del haz  $\pi\sigma^2 \approx \pi 16\mu m^2$  se obtiene

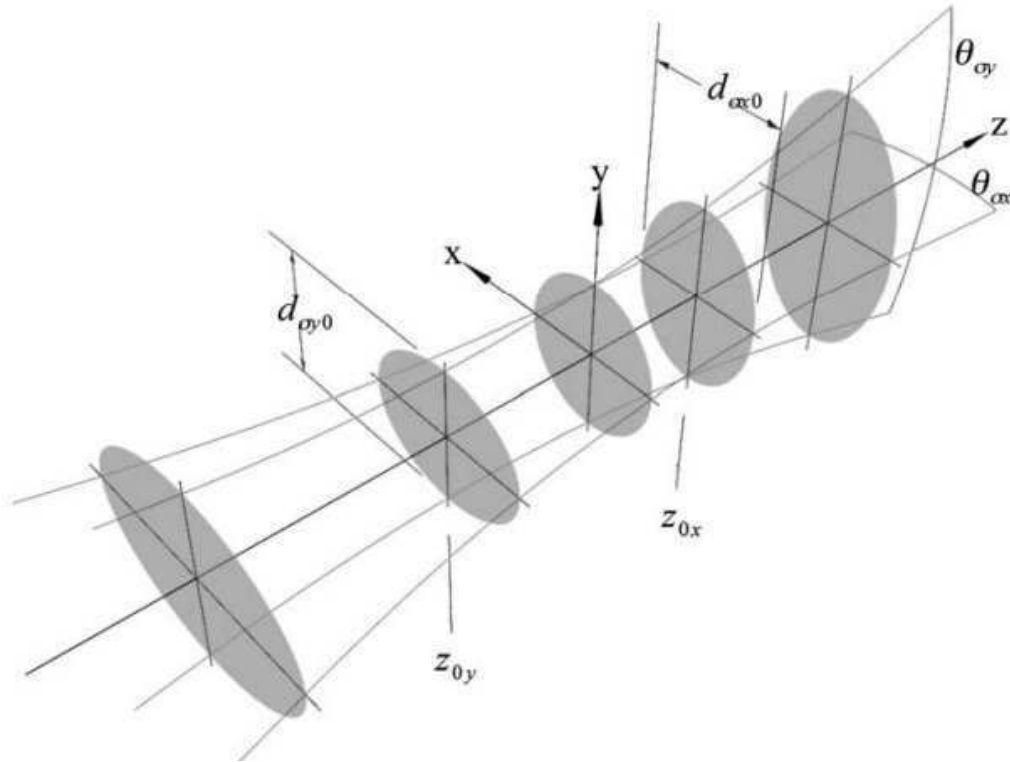
$$\begin{aligned}\dot{Q}_{aire} &= 15 \frac{W}{m^2 K} \pi 16\mu m^2 \Delta T \approx 7.5 \cdot 10^{-10} W/K \\ \dot{Q}_{Bi} \Big|_{\omega > \omega_0} &= 2 \cdot 10^{-4} W/K\end{aligned}\tag{2.49}$$

Se puede observar que el flujo de calor en el aire es  $10^{-6}$  veces más chico que el flujo en el material, por lo cual se puede despreciar en las cuentas. Cabe destacarse que se compara con el flujo para  $\omega > \omega_0$ , ya que para frecuencias bajas el flujo es aún mayor.

## ***2.8 Señal de error de foco (FE).***

El sistema de detección de tesis doctoral se basa en la generación de una señal denominada señal de error de foco (FE) que permite cuantificar el desenfoque de un haz. La señal FE posee un rango lineal donde la tensión de la señal es directamente proporcional al desenfoque del haz, y por ende a un corrimiento de la superficie reflectora sobre la cual incide el haz. Para generar la señal de error de foco se utiliza un haz astigmático y un detector de cuatro cuadrantes.

Un haz astigmático es aquel en el cual las secciones transversales (vertical y horizontal) del mismo se enfocan en planos diferentes. Dicho astigmatismo puede ser propio de la emisión del haz, debido a la geometría de la cavidad del mismo, o introducido por ejemplo con una lente cilíndrica. Al enfocar un haz astigmático con una lente esférica, uno de los ejes transversales se enfocará antes que el otro debido a la diferencia en la divergencia de los haces en ambos ejes (ver figura 2.9): primero la componente vertical pasa por su foco y por ende se observa una elipse en el eje horizontal; continúa propagándose el haz con la componente vertical divergiendo, mientras que la horizontal sigue convergiendo, por lo cual en un determinado plano, ambas cinturas del haz se igualan y se obtiene un haz con forma circular; por último la componente vertical sigue divergiendo, mientras que la componente horizontal alcanza su foco y se observa una elipse vertical.

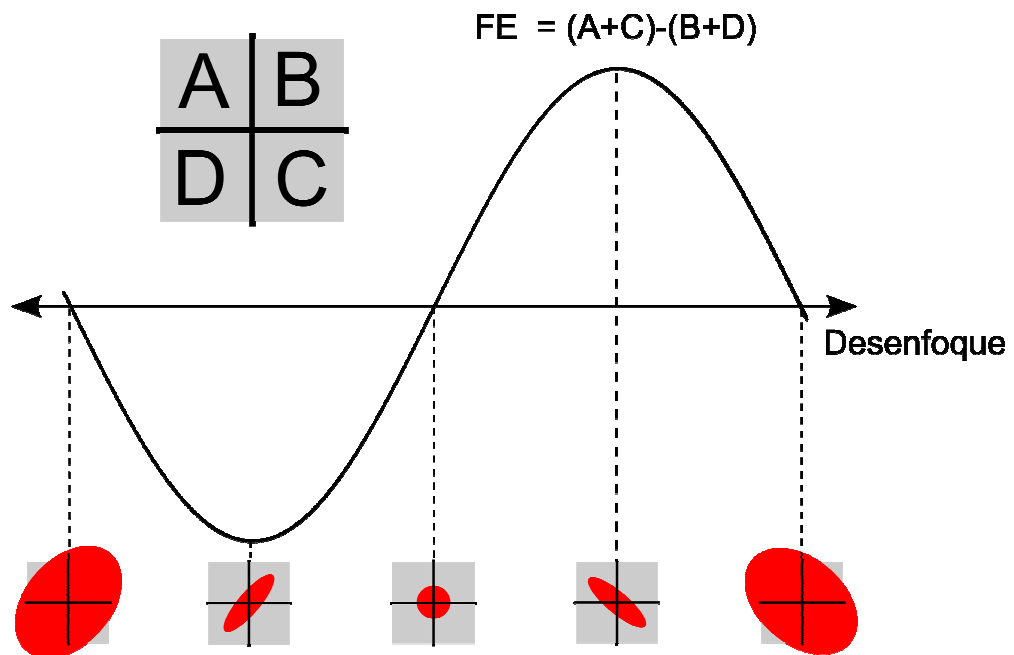


**Figura 2.9:** Esquema del enfoque de un haz astigmático. Se observa como se pasa de una elipse con eje mayor en el eje x a una elipse con eje mayor en el eje y, pasando por un plano en el cual el haz es perfectamente circular. En la figura se marcan tanto los anchos del haz  $d_{\sigma_{x0}}$  y  $d_{\sigma_{y0}}$  en los planos  $z_{0x}$  y  $z_{0y}$  respectivamente, como los ángulos de divergencia  $\theta_{\sigma_x}$  y  $\theta_{\sigma_y}$ . (Imagen tomada de <http://www.sparpointgroup.com/beam-width.aspx>)

Por lo tanto, la forma del haz cambia a medida que se propaga el haz. Esto motiva a pensar que determinando la forma del haz se puede determinar el plano en el cual se encuentra el mismo. Es justamente ésta la idea detrás de la señal error de foco, donde se utiliza un detector de cuatro cuadrantes para determinar la forma del haz y generar una señal proporcional al desplazamiento del haz (o al desenfoque del haz, si se considera que como en foco al plano donde el haz es circular).

El detector de cuatro cuadrantes no es más que un conjunto de cuatro fotodiodos independientes y de áreas iguales (ver figura 2.10). Los ejes del cuatro cuadrantes deben estar a  $45^\circ$  de los ejes de las elipses del haz astigmático. De esta manera, la señal de error de foco sale de calcular el desbalance entre las diagonales del cuatro cuadrantes. Del signo de dicho desbalance se puede determinar el semieje mayor de la elipse, mientras que de la magnitud del desbalance se puede cuantificar la razón entre los ejes de la elipse (un desbalance nulo corresponde a un haz circular).

Si se nombran a los cuadrantes del detector  $A$ ,  $B$ ,  $C$  y  $D$ , la señal de error de foco proviene de realizar la siguiente operación aritmética entre las señales de los cuadrantes:  $FE = (A+C) - (B+D)$ . La señal resultante se anula cuando el haz es perfectamente circular o cuando la divergencia es tal que las elipses cubren la totalidad del detector; es máxima cuando la elipse queda alineada con la diagonal  $AC$ ; y es mínima cuando la elipse queda alineada con la diagonal  $BD$ . De esta manera se tiene una curva en forma de “S” que posee un rango lineal donde la señal es proporcional al desenfoque.



**Figura 2.10:** A partir de las señales de un detector de cuatro cuadrantes, se genera la señal de error de foco FE. Se muestra como varía la señal FE en función del desenfoque del haz. Además se puede ver como es la forma del haz sobre el detector en diferentes puntos de la señal.

La pendiente del rango lineal determina la sensibilidad de la señal de error de foco al desenfoque del haz ( $Sensibilidad = \Delta FE / \Delta Desenfoque$ ). Dicha sensibilidad depende de varios parámetros del sistema:

- **Potencia del haz.** La señal de los fotodiodos que componen el detector de cuatro cuadrantes es proporcional a la potencia de luz que incide sobre su área sensible (siempre y cuando se esté en el rango lineal del mismo, ver sección 3.4 Electrónica de señales FE, DefX y DefY). Al aumentar la potencia del haz, cada cuadrante aumentará proporcionalmente su señal. El factor de proporcionalidad no tiene porque ser el mismo para todos los cuadrantes, tanto por la distribución de potencia de un haz Gaussiano astigmático, como porque el haz puede estar descentrado

respecto al detector de cuatro cuadrantes. Por simpleza, si se supone que el factor de proporcionalidad es el mismo para todos los cuadrantes, al aumentar la potencia del haz de prueba se obtiene una señal  $FE' = \beta FE = \beta(A+C) - (B+D)$  con  $\beta > 1$ .

- *Reflectividad de la muestra.* Cuando se mide el haz reflejado sobre una muestra, a mayor reflectividad de la misma, mayor potencia del haz incide sobre el detector y por ende se obtiene una mayor sensibilidad (análogo a un aumento de potencia del haz).
- *Parámetro confocal del haz.* El parámetro confocal del haz (dos veces el rango de Rayleigh,  $2z_0 = 2\pi w_0^2 / \lambda$  donde  $w_0$  es la cintura del haz en el foco y  $\lambda$  es la longitud de onda) es la distancia axial en la cual el ancho del haz no supera  $\sqrt{2}w_0$ . A menor parámetro confocal, menor es el tamaño del haz en el foco y mayor es la divergencia del haz. Por ende, el rango de desenfoque en el cual el haz no llega a cubrir todo el cuatro cuadrantes es menor y esto resulta en un aumento de sensibilidad de la señal de error de foco.
- *Ganancia de la electrónica.* Para realizar la cuenta aritmética con las señales de los cuadrantes del detector se utilizan circuitos restadores basados en amplificadores operacionales (ver sección 3.4 Electrónica de señales FE, DefX y DefY). En la última etapa de la electrónica, se puede regular la ganancia hasta un valor máximo de 2. De esta manera cambiando la ganancia del circuito se puede cambiar la sensibilidad de la señal de error de foco.

La simetría de la señal de foco depende la alineación del haz con el cuatro cuadrantes y se puede corregir monitoreando las señales de cada cuadrante en forma simultánea. El punto de la señal de error de foco que se elige para trabajar es el punto donde la señal se anula, entre el máximo y el mínimo, o sea en el medio del rango lineal de la señal (se dice que en ese punto el haz está enfocado sobre la muestra). Dicha elección no es arbitraria, ya que dicho punto permite medir un desplazamiento de igual amplitud en ambas direcciones, sin irse del rango lineal. Pero la principal razón por la cual se elige dicho punto para trabajar es que es el único punto del rango lineal donde las diagonales están balanceadas y por ende cualquier contribución de termorefectancia a la señal de error de foco se anula. De esta manera, la señal medida solo poseerá contribuciones de desenfoque por curvatura y deflexión. La deflexión se minimiza alineando el haz de excitación y el de prueba para que sean colineales entre sí. Además se pueden alinear

los haces minimizando las señales de deflexión monitoreándolas en un amplificador lock-in.

## 2.9 Cuantificación del desenfoque por curvatura con la señal FE.

El desenfoque del haz debido a la curvatura de la superficie escala como  $\Delta f \propto \sigma_{prueba}^4 / \sigma_{exc}^2$  (ver ecuaciones (2.27) y (2.41)). Para saber como escala la señal medida con el tamaño de los haces, hace falta estudiar como escala la señal FE. La sensibilidad del rango lineal de la señal FE se calcula con el cociente entre los niveles de tensión de la señal  $\Delta V$  y el rango de distancias correspondiente  $\Delta z$ , que es proporcional al rango de Rayleigh del haz de prueba. Por ende, un desenfoque del haz  $\Delta f$  producirá una variación en la señal FE de

$$\Delta FE = \Delta f \cdot \frac{\Delta V}{\Delta z} \propto \frac{\sigma_{prueba}^4}{\sigma_{exc}^2} \cdot \frac{\Delta V}{z_0} \propto \frac{\sigma_{prueba}^4}{\sigma_{exc}^2} \cdot \frac{\Delta V}{\sigma_{prueba}^2} \propto \Delta V \left( \frac{\sigma_{prueba}}{\sigma_{exc}} \right)^2 \quad (2.50)$$

La señal medida escala como el cuadrado del cociente del tamaño de los haces de prueba y excitación. En el dispositivo experimental propuesto, ambos haces se enfocan con el mismo objetivo, por lo cual los tamaños de los mismos son similares entre si, haciendo que dicho cociente resulte cercano a la unidad. Es importante notar que el nivel de señal medido no escala con la magnificación del objetivo.

Por último, cuantificando el desenfoque del haz a través de una calibración en distancia de la señal FE, es posible caracterizar propiedades térmicas de la muestra. Como mencionado anteriormente, el desenfoque producido por la curvatura de la muestra genera un cambio en la señal FE medida que depende de propiedades térmicas del material (ver ecuaciones (2.27) y (2.41))

$$\Delta FE = \Delta f \cdot \frac{\Delta V}{\Delta z} = 8\pi\eta_e P_\omega \frac{\sigma_{prueba}^4}{\lambda_{prueba} \sigma_{exc}^2} \frac{\lambda_z}{\kappa_r} h(\omega/\omega_0) \cdot \frac{\Delta V}{\Delta z} \propto \frac{\lambda_z}{\kappa_r} \quad (2.51)$$

De la ecuación (2.51) se observa que la señal medida es proporcional al cociente entre el coeficiente de expansión lineal y la conductividad térmica de la muestra. Por lo tanto, midiendo el tamaño del haz de prueba  $\sigma_{prueba}$  y el de excitación  $\sigma_{exc}$ , la potencia modulada del haz de excitación  $P_\omega$ , la eficiencia de conversión de luz en calor  $\eta_e$ , la



longitud de onda del haz de prueba  $\lambda_{prueba}$ , la sensibilidad de la señal de error de foco  $\Delta V/\Delta z$  y calculando la integral  $h(\omega/\omega_0)$ , es posible hallar un valor para el cociente  $\lambda_z/\kappa_r$  de la muestra.



Los capítulos 3 y 4 fueron retirados a pedido del autor

At author's request chapters 3 and 4 have been withdrawn

## **Capítulo 5:**

# **Validación de la Técnica.**

El trabajo de esta tesis doctoral se basa en el desarrollo de una técnica novedosa capaz de medir difusividad térmica en materiales con resolución micrométrica. Por lo tanto, el objetivo principal fue el del desarrollo y la caracterización de un dispositivo experimental para la tarea en cuestión. Dicho dispositivo es un primer prototipo de un producto comercial que actualmente se está terminando de desarrollar en la empresa incubada Tolket SRL (con algunas modificaciones en su implementación final). Al acoplarse al puerto de cámara de cualquier microscopio óptico y su carácter modular lo hace fácilmente comerciable como un accesorio de microscopio pensado principalmente para caracterizaciones en planta de muestras (aleaciones, aceros tratados, pastillas de combustible, síntesis de materiales, etc.).

Por ende, en la última etapa del trabajo, una vez culminada la etapa del desarrollo del dispositivo experimental, se procede a validar la técnica midiendo muestras conocidas y constatando los resultados experimentales obtenidos con los valores tabulados de difusividad térmica. Para ello, se mide una muestra de Bismuto pulida y un cubreobjetos de vidrio.

### ***5.1 Medición de difusividad térmica – Bismuto.***

La primera muestra elegida para caracterizar fue de Bismuto pulido (ver figura 5.1). El pulido se realiza para mejorar la reflexión del haz de prueba, minimizando la dispersión

del haz y logrando una reflexión especular en vez de una difusa. Dado que la sensibilidad de la curva de error de foco es proporcional a la potencia reflejada, una buena reflexión especular significa una mayor potencia del haz de prueba que vuelve sobre si mismo e impacta sobre el detector, logrando así mejorar la sensibilidad de la técnica. La luz difusa no debería aportar a la señal de foco dado que se anularía en la resta de los cuadrantes, pero si puede cambiar el nivel de luz de fondo que reciben los detectores.



**Figura 5.1:** Muestra de Bismuto. La misma se monta sobre un anillo de una pulgada de acero y se rellena con un epoxy. Luego se realiza un pulido de la superficie para lograr una reflexión especular del haz de prueba.

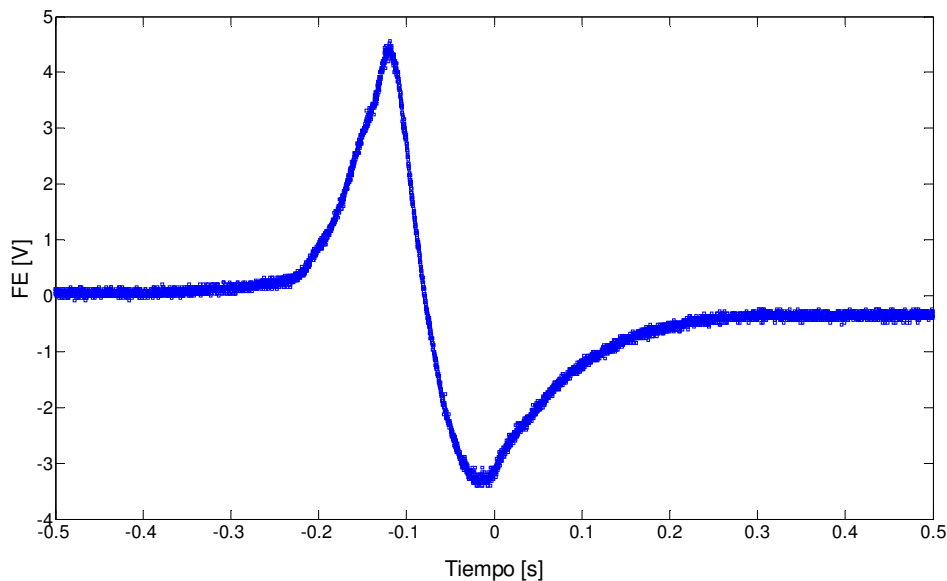
En la tabla 5.1 se encuentran valores tabulados de distintas propiedades tanto térmicas como no térmicas del Bismuto. El valor de interés en este caso es el de la difusividad térmica tabulada,  $0.066 \text{ cm}^2/\text{s}$ , que se calcula a partir de  $D = \kappa / \rho c_p$  donde  $\kappa$  es la conductividad térmica,  $\rho$  la densidad y  $c_p$  el calor específico.

| <b>Propiedades Físicas</b>                   | <b>Bismuto</b> |
|--|----------------|
| Coefficiente de Expansión [1/K]              | 1.34E-05       |
| Densidad [g/cm <sup>3</sup> ]                | 9.8            |
| Calor Específico [J/(kg <sup>o</sup> C)]     | 123            |
| Conductividad Térmica [W/(m <sup>o</sup> K)] | 7.92           |
| Difusividad Térmica [cm <sup>2</sup> /s]     | 0.066          |

Tabla 5.1: Valores tabulados de propiedades físicas del Bismuto.

Una vez montada la muestra en la platina del microscopio, se mueve el objetivo (Olympus 4X con 0.1 de apertura numérica) buscando en el osciloscopio la curva con forma de “S” característica de la señal de error de foco. El punto donde se debe ubicar el

objetivo para medir es cuando la señal de error de foco vale cero, luego de pasar por un máximo o un mínimo. En la figura 5.2 se puede observar una curva típica de error de foco para la muestra de Bismuto pulido. La misma se obtiene moviendo a mano el objetivo con el eje z del microscopio. Por lo tanto, la asimetría y la duración de la curva en el eje temporal dependerán de cuán uniforme y con que velocidad se realice el movimiento. Elegir trabajar en el punto donde se anula la señal FE permite despreciar contribuciones de termorefectancia en la señal medida.



**Figura 5.2:** Curva típica de FE, para la muestra de Bismuto pulido. La sensibilidad del rango lineal depende de la ganancia del circuito electrónico, la reflectividad de la muestra, la potencia del haz de prueba y del parámetro confocal del haz (o sea, del objetivo utilizado para enfocar sobre la muestra). Para la muestra de Bismuto pulido utilizado, con una tensión de monitoreo del haz de prueba de 400 mV, se obtiene una sensibilidad de  $\sim 37 \mu\text{m}/\text{V}$  (equivalente a  $27.2 \text{ mV}/\mu\text{m}$ ).

Con una tensión de monitoreo de potencia del haz de prueba de 400 mV y máxima ganancia en la electrónica de la señal de error de foco, se obtiene un rango lineal de aproximadamente  $220 \mu\text{m}$  con una sensibilidad de  $\sim 37 \mu\text{m}/\text{V}$  (un desplazamiento de  $1 \mu\text{m}$  genera una señal de  $27.2 \text{ mV}$ ). Si se desea mejorar la sensibilidad, se puede aumentar la potencia del haz de prueba. Para la máxima potencia del haz de prueba en la muestra,  $22.15 \text{ mW}$  (tensión de monitoreo de  $781 \text{ mV}$ ), se obtiene un rango lineal de aproximadamente  $122 \mu\text{m}$  con una sensibilidad de  $6 \mu\text{m}/\text{V}$  (un desplazamiento de  $1 \mu\text{m}$  genera una señal de  $163.9 \text{ mV}$ ). Es importante notar que una señal de  $1 \mu\text{V}$ , que es posible medir con un amplificador lock-in, se corresponde con un desplazamiento de apenas  $6 \text{ pm}$ . Igualmente, la limitación de la resolución axial de la técnica está dada por

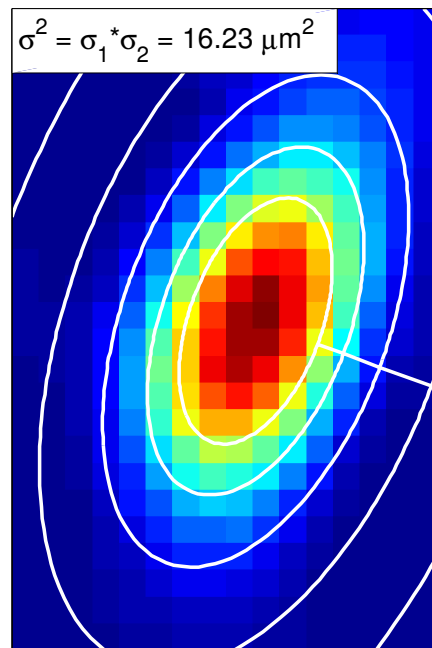
el ruido de la señal de error de foco en el amplificador lock-in que es de decenas de  $\mu\text{V}$ . Con las sensibilidades típicas que se trabajaron en la tesis, se obtiene una resolución axial subnanométrica.

Es de interés ver a cuanto equivale una resolución axial subnanométrica en términos del radio de curvatura. Para ello se supone que el corrimiento de foco debido a la curvatura superficial es de  $\Delta f = 1\text{nm}$ . De la ecuación (2.41) y usando que los tamaños del haz de prueba ( $\lambda = 0.658\mu\text{m}$ ) en el plano de la muestra son  $\sigma_1 = 2.8\mu\text{m}$  y  $\sigma_2 = 2.3\mu\text{m}$  para hallar el parámetro confocal del haz, se estima el máximo radio de curvatura que se puede resolver  $R_{\text{máx}} = 15\text{m}$ . Dicho radio de curvatura se corresponde a una expansión térmica de 0.2 pm (ver ecuación (2.42)) y a un aumento de temperatura  $\Delta T \sim \text{mK}$ . En dicho caso, el efecto de curvatura es 5000 veces más grande que el de la expansión térmica. Además, utilizando las expresiones de la ecuación (2.27) y valores tabulados para las propiedades térmicas del Bismuto, se estima la mínima potencia modulada del haz de excitación necesaria para tener una señal apreciable, obteniendo un valor de  $P_\omega = 19\mu\text{W}$  a  $\omega = \omega_0$ .

En las mediciones que siguen, el interés recae en la respuesta en frecuencia de la señal de error de foco. Por lo tanto, no es necesario calibrar la señal de foco en distancia ya que no se desea cuantificar el desplazamiento absoluto, sino estudiar su dependencia con la frecuencia. Esto agiliza las mediciones y evita la necesidad de que el eje z del microscopio este motorizado. Cabe recalcar que si se cuantifica la señal de error de foco y se determinan los desplazamientos absolutos, es posible realizar una caracterización adicional de los parámetros térmicos de la muestra, en particular el cociente entre el coeficiente de expansión y la conductividad térmica del material,  $\lambda_z/\kappa_r$  (ver sección 2.9 Cuantificación del desenfoque por curvatura con la señal FE).

Luego, se ilumina la muestra con un LED Luxion de 470 nm y se mueve la CCD hasta que la muestra se vea en foco. Se apaga el LED y usando los últimos posicionadores angulares del haz de excitación, se solapan ambos haces mirando la cámara CCD. La medición se realiza con una potencia en la muestra de 15.7 mW del haz de excitación (tensión de monitoreo de 803 mV) y una potencia de 3.5 mW (tensión de monitoreo de 400 mV). Asegurándose que la señal de error de foco siga siendo nula, se adquiere una

imagen del haz de excitación ( $\lambda = 784 \text{ nm}$ ) para determinar su tamaño usando un ajuste Gaussiano 2D (ver figura 5.3). Dicho ajuste calcula el tamaño de la cintura del haz en los ejes de la elipse del mismo, determinando a su vez el ángulo de la elipse respecto a los ejes de la cámara: en el eje mayor  $\sigma_1 = 5.619 \mu\text{m}$ , en el eje menor  $\sigma_2 = 2.889 \mu\text{m}$ ; ángulo entre el semieje mayor y el eje horizontal de la cámara  $\alpha = 69.7^\circ$ . Para calcular la difusividad térmica de la muestra se necesita el valor del producto de las cinturas del haz,  $\sigma_1 \cdot \sigma_2 = 16.23 \mu\text{m}^2$ , conjuntamente con el valor de la frecuencia de corte  $\omega_0$ .

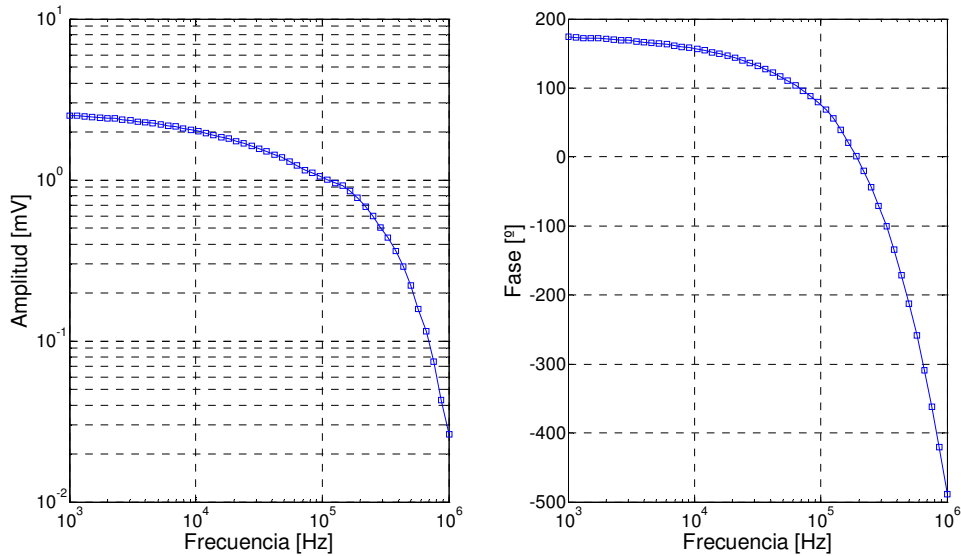


**Figura 5.3:** Imagen del haz de excitación ( $\lambda = 784 \text{ nm}$ ) en el plano de la muestra tomada con la cámara CCD. Se observan las curvas de nivel del ajuste Gaussiano 2D, del cual se obtiene los valores de las cinturas del haz en los ejes de la elipse y el ángulo de inclinación de la elipse respecto a los ejes de la cámara. Se obtiene un valor de  $16.23 \mu\text{m}^2$  utilizando un objetivo 4X.

Un generador de funciones modula la potencia del haz de excitación y la misma señal modulada sirve como señal de referencia para el amplificador lock-in. Se realiza un barrido en frecuencia de la señal de error de foco. La elección de la frecuencia inicial y final es tal que por lo menos abarque una década por debajo y una por arriba de la frecuencia de corte esperada. Conociendo el valor tabulado de la difusividad térmica del Bismuto y el ajuste del tamaño del haz de excitación en la muestra se puede calcular la frecuencia de corte usando

$$f_0 = \frac{D_{Bi}}{\pi\sigma^2} = \frac{0.0657 \text{ cm}^2 / \text{s}}{\pi \cdot 16.23 \mu\text{m}^2} \cong 129 \text{ kHz} \quad (4.1)$$

Por lo tanto se elige barrer entre 1kHz y 1MHz (limitación del amplificador lock-in Anfatec AMU2.4), que es un rango más amplio del necesario para tener un buen ajuste. El barrido es logarítmico y se toman 50 puntos entre la frecuencia inicial y final. En la figura 5.4 se puede ver la amplitud y la fase de la señal de error de foco para un barrido en frecuencia realizado sobre la muestra de Bismuto pulido.

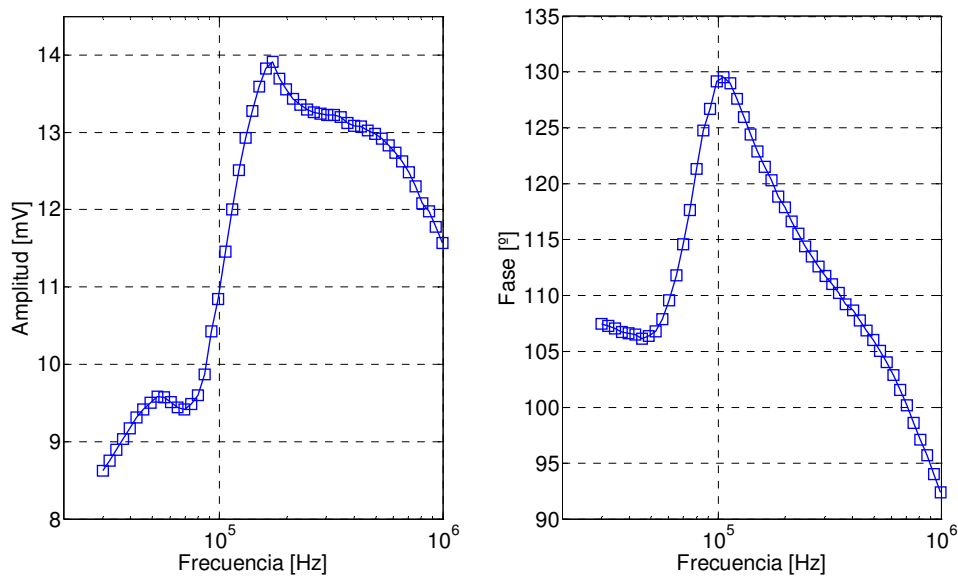


**Figura 5.4:** Barrido en frecuencia de señal de error de foco para muestra de Bismuto. Se grafica la amplitud y la fase de la señal en función de la frecuencia de modulación del haz de excitación.

Las mediciones realizadas deben normalizarse para compensar la respuesta en frecuencia de la potencia modulada del haz de excitación, la respuesta en frecuencia de la electrónica que genera la señal de error de foco y cualquier otro desfasaje que puede deberse a cables o conexiones entre los equipos. En la figura 5.5 se presenta la respuesta en frecuencia (de 30 kHz a 1MHz) de la potencia modulada del haz de excitación a la salida del cabezal de DVD. La misma se mide utilizando un fotodiodo de área chica ( $0.31 \text{ mm}^2$ ) polarizado con una batería de 12 V, tipo 23A, conectado a un amplificador lock-in Anfatec modelo AMU2.4, con una resistencia en paralelo a la entrada de  $50 \Omega$ , que mejora notablemente la respuesta en frecuencia del mismo al costo de perder amplitud de la señal. Para dicho fotodiodo polarizado con 9 V se tiene una capacidad de  $\sim 3 \text{ pF}$  (valor obtenido de Catálogo Melles Griot 1995/96, sección *Fundamentals of Photodiodes*) y conjuntamente con la impedancia de entrada del amplificador lock-in ( $100 \text{ k}\Omega$ ,  $20 \text{ pF}$ ) se obtiene un tiempo de respuesta, que proviene de un cálculo ideal, de alrededor de 1.65 ns. Esto permitiría, en teoría, medir hasta una frecuencia máxima de

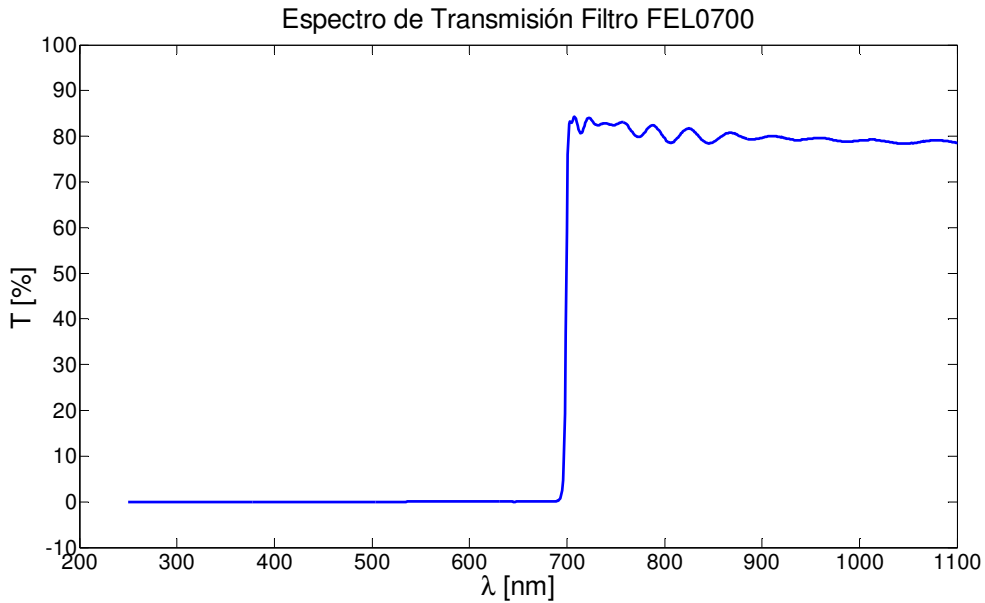


606 MHz, lo que asegura tener una buena respuesta hasta 1 MHz, que es el rango en el cual se desea caracterizar la modulación.



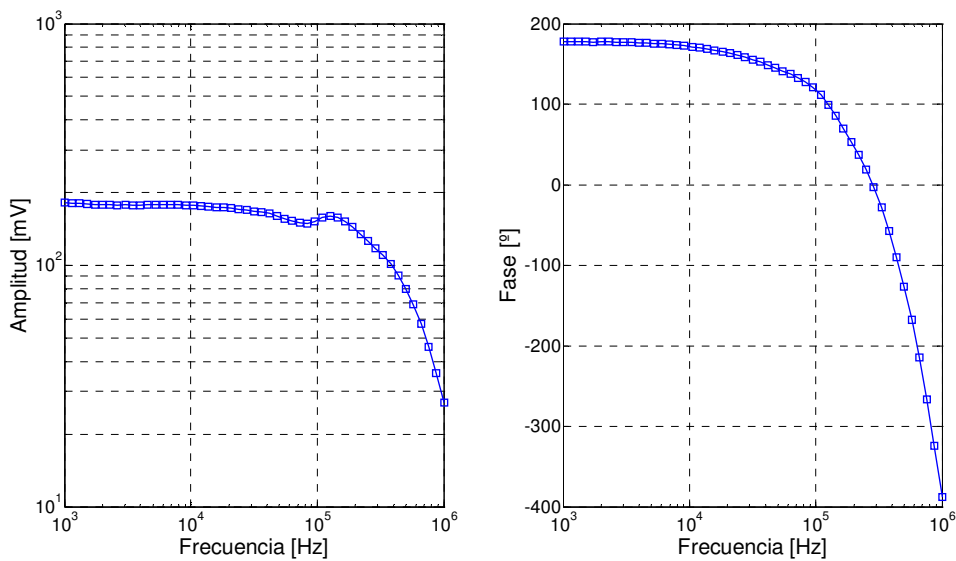
**Figura 5.5:** Barrido en frecuencia de potencia modulada del haz de excitación. Las mediciones se realizan con un fotodiodo de área chica, polarizado con 9 V y con una resistencia en paralelo de 50  $\Omega$  conectado a un amplificador lock-in.

Como se puede observar de la respuesta en frecuencia del haz de excitación modulado, ni la amplitud ni la fase del mismo son constantes. Por lo tanto, estas variaciones observadas de amplitud y fase, motivan la necesidad de cuantificarlas y utilizarlas para normalizar las mediciones del barrido en frecuencia de la señal de error de foco. Se denomina *fase cero* al barrido en frecuencia que permite normalizar la medición y compensar por variaciones experimentales en amplitud y fase. Para medir la fase cero del experimento, luego del barrido en frecuencia de la señal de error de foco se intercala a la salida del haz de prueba un filtro pasa alto FEL0700 (tiene una longitud de onda de corte de 700 nm y deja pasar las longitudes de onda por arriba, ver figura 5.6) y se remueve el filtro pasa bajos FES0750 (ver sección 4.10 Protocolo de medición) para lograr que el haz de excitación sea medido por el detector de cuatro cuadrantes pero el haz de prueba no llegue a la muestra. Con esta configuración, el barrido en frecuencia de la fase cero mide tanto las variaciones de amplitud y fase en la modulación del haz de excitación, como las de toda la electrónica de detección y los cables utilizados.



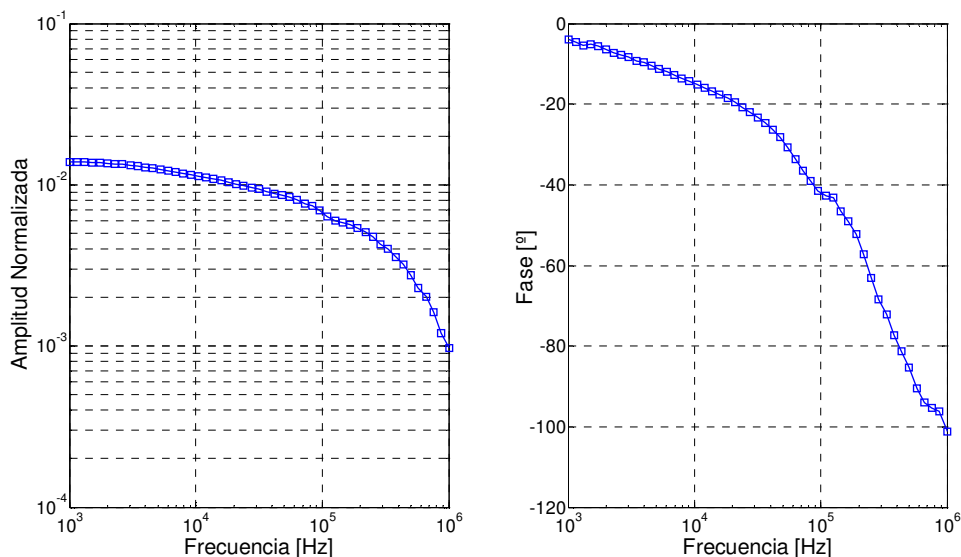
**Figura 5.6:** Espectro medido de filtro pasa alto FEL0700 utilizado para filtrar el haz de prueba y que el mismo no llegue a la muestra.

Es importante notar, que el haz de excitación seguirá provocando una respuesta térmica en la muestra que a su vez, debido a la curvatura de la superficie, desenfocara al haz de excitación y puede aparecer en la señal de error de foco de la fase cero. Pero la señal de error de foco correspondiente a la fase cero, a una frecuencia de modulación de 1 kHz, es de 181.5 mV comparada con la señal de error de foco correspondiente al desenfoco del haz de prueba, que a la misma frecuencia es de tan solo 2.5 mV. Por ende cualquier desenfoco por curvatura que pueda sufrir el haz de excitación quedará enmascarado en la señal medida por el amplificador lock-in que se corresponderá, principalmente, a la potencia del haz de excitación reflejada en la superficie de la muestra. En la figura 5.7 se observa la medición de la fase cero medida para la muestra de Bismuto.



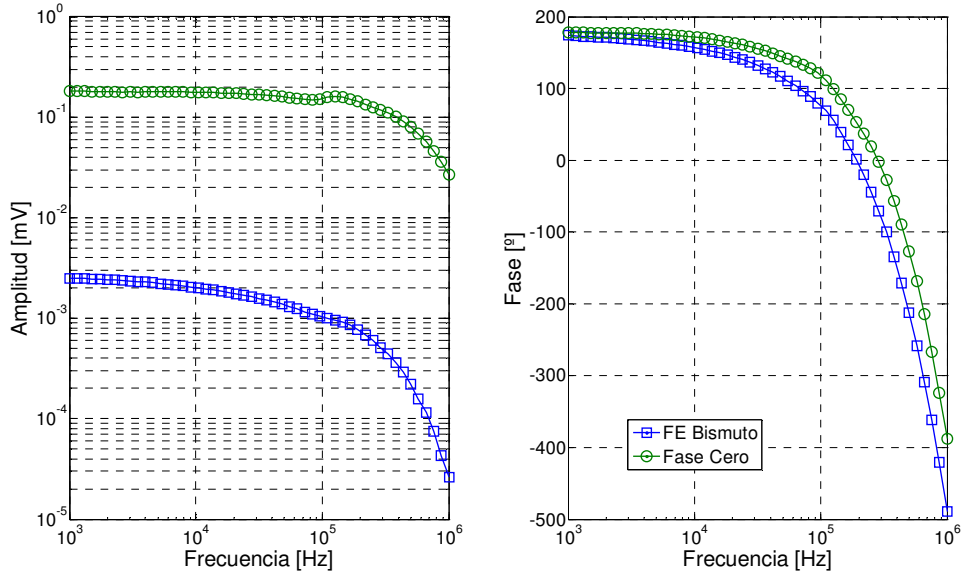
**Figura 5.7:** Barrido en frecuencia correspondiente a la medición de la fase cero para normalizar mediciones realizadas en la muestra de Bismuto pulido.

Una vez medida la señal de error de foco para la muestra y su fase cero, se realiza la normalización correspondiente: se dividen las amplitudes y se restan las fases. En la figura 5.8 se grafica el barrido en frecuencia de la señal normalizada de desenfoco del haz de prueba debido a la curvatura inducida por el haz de excitación sobre una muestra de Bismuto pulido.



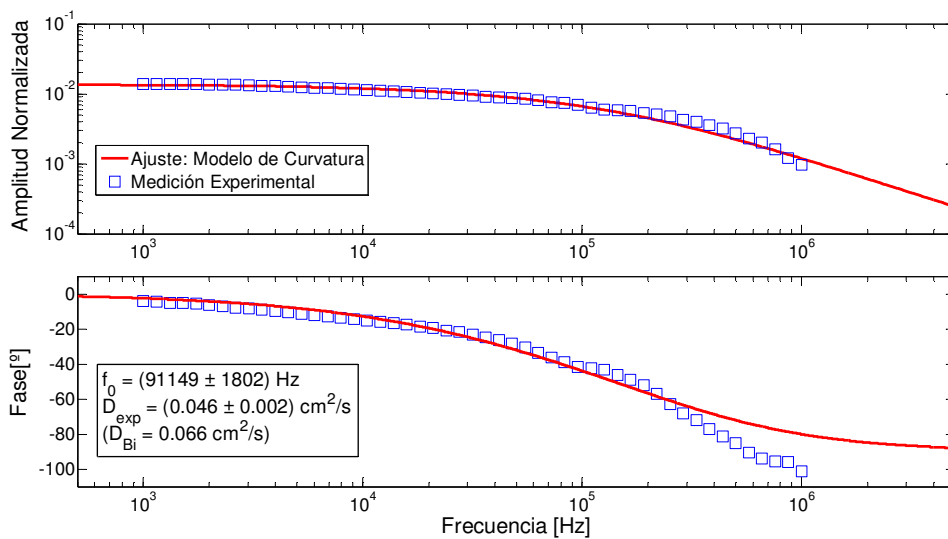
**Figura 5.8:** Barrido en frecuencia de amplitud y fase normalizada, por la fase cero, de la señal de error de foco del haz de prueba en la muestra de Bismuto pulido.

Para poder analizar las curvas normalizadas e interpretar el porque del comportamiento observado, se grafican conjuntamente la señal medida correspondiente al haz de prueba y la fase cero (ver figura 5.9).



**Figura 5.9:** Comparación de barrido en frecuencia de señal de error de foco (FE) medida con la muestra de Bismuto y su correspondiente fase cero. Se grafica tanto la amplitud como la fase de la señal.

Luego, utilizando la curva teórica de la respuesta en frecuencia del desenfoque generado por la curvatura superficial de la muestra (respuesta térmica al calentamiento producido por la absorción del haz de excitación), se ajustan los datos de la medición normalizada (ver figura 5.10). Se puede observar que la amplitud tiene un comportamiento en frecuencia acorde con el modelo, mientras que la fase se desvía significativamente a frecuencias altas ( $> 200\text{kHz}$ ). Del ajuste se obtiene el valor de la frecuencia de corte,  $f_0 = (91149 \pm 1802)\text{Hz}$ . Conjuntamente con el valor del ajuste del tamaño del haz de excitación se obtiene el valor de la difusividad térmica de la muestra,  $D = \pi f_0 \sigma^2 = (0.046 \pm 0.002)\text{cm}^2 / \text{s}$ .

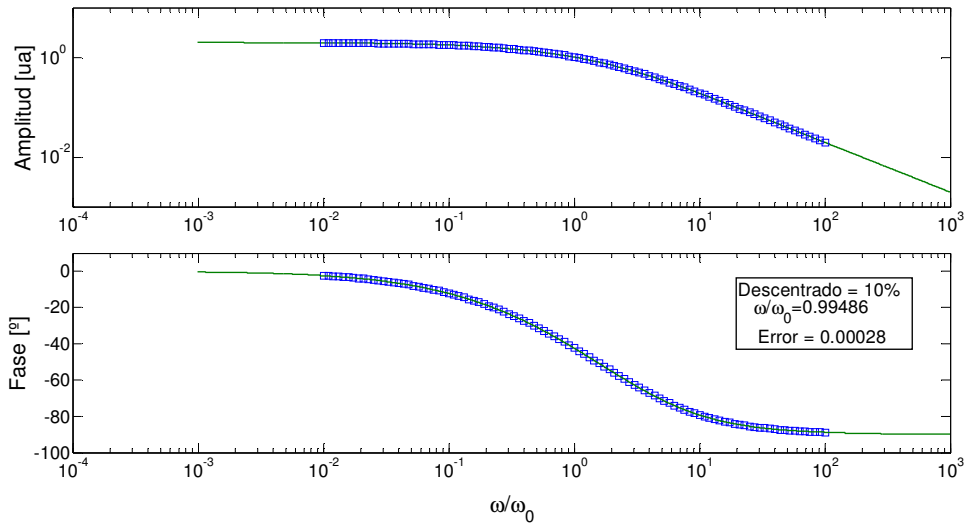


**Figura 5.10:** Ajuste no lineal con modelo de curvatura para la señal de error de foco en la muestra de Bismuto pulida, normalizada por la fase cero. Se observa que aunque la amplitud parece ajustar adecuadamente, la fase no tiene el comportamiento esperado.

El valor tabulado para la difusividad térmica del Bismuto es de  $0.066 \text{ cm}^2/\text{s}$ . El valor ajustado difiere considerablemente (en más del 30%) del valor tabulado, lo cual no sorprende al observar el ajuste. Una posible explicación a este comportamiento de la fase puede ser la estabilidad en la puntería de los haces que puede solucionarse reemplazando los diodos por diodos láser acoplados a fibra y de esta manera asegurar la colinealidad de ambos haces. Otra hipótesis sugiere que haya algún otro efecto, además del desenfoque por la curvatura de la superficie que se esté midiendo en la señal y altere la fase y no tanto la amplitud de la señal. En una primera instancia se pensaba que podía ser una contribución de termorefectancia que no se estuviera cancelando correctamente, pero la fase de la termorefectancia a alta frecuencia tiende a un desfase de  $\pi/4$ , por lo cual debería subir la fase y no bajarla respecto al modelo de curvatura como se observa en la figura 5.10. Por otra parte, la deflexión posee un comportamiento de fase muy similar a la curvatura, donde la fase de ambos fenómenos tiende a  $\pi/2$  para altas frecuencias.

Para descartar que una posible contribución de fotodeflectión este afectando los ajustes realizados se calcularon numéricamente curvas teóricas de deflexión en función de la frecuencia para diferentes descentrados de los haces de excitación y prueba, suponiendo

haces circulares (sin astigmatismo) y se ajustaron las curvas obtenidas al modelo de desenfoque por curvatura. En la figura 5.11 se muestra uno de estos ajustes, en amplitud y fase, realizados para un descentrado de los haces del 10%.



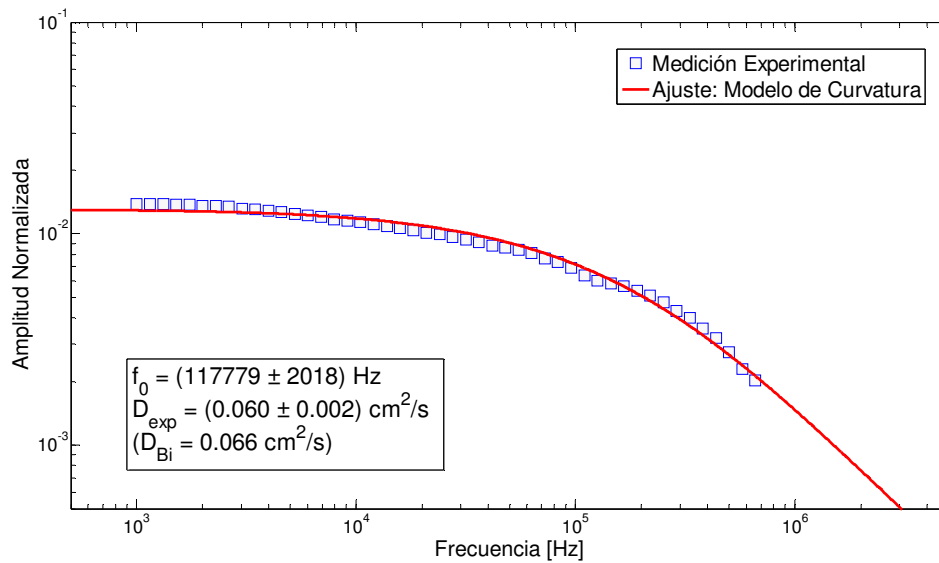
**Figura 5.11:** Curvas de deflexión en función de la frecuencia calculadas numéricamente ajustadas por modelo de desenfoque por curvatura. El caso particular graficado se corresponde a la deflexión observada para un descentrado de los haces del 10%.

Del ajuste se obtiene la frecuencia de corte para cada descentrado y un error que cuantifica la bondad del ajuste (ver tabla 5.2). Se puede observar que un desenfoque de hasta 40% entre ambos haces genera un cambio menor al 10% en la frecuencia de corte del ajuste con el modelo de desenfoque por curvatura. La superposición de los haces se realiza monitoreando los haces con una cámara CCD, con lo cual el descentrado que puede existir, dado el error experimental, es mucho menor al 40%. Por lo tanto, aunque la señal medida contenga contribuciones de fotodeflectión, no deberían alterar el valor de la frecuencia de corte obtenida en más de un 10%.

| <b>Descentrado [%]</b> | <b><math>\omega_0</math> [ua]</b> | <b>Error (<math>10^{-3}</math>)</b> |
|------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|
| 1                      | 0.99994                           | 0.26                                |
| 10                     | 0.99486                           | 0.28                                |
| 20                     | 0.9797                            | 0.38                                |
| 30                     | 0.95408                           | 1.1                                 |
| 40                     | 0.91753                           | 3.0                                 |
| 50                     | 0.87934                           | 1.1                                 |
| 60                     | 0.82862                           | 2.4                                 |
| 70                     | 0.77428                           | 3.1                                 |
| 80                     | 0.71507                           | 5.3                                 |
| 90                     | 0.64956                           | 9.0                                 |
| 100                    | 0.58623                           | 15                                  |

**Figura 5.2:** Datos de los ajustes realizados a curvas de deflexión simuladas numéricamente para distintos descentrado de los haces. Se muestran los valores obtenidos para la frecuencia de corte  $\omega_0$  y el error del ajuste.

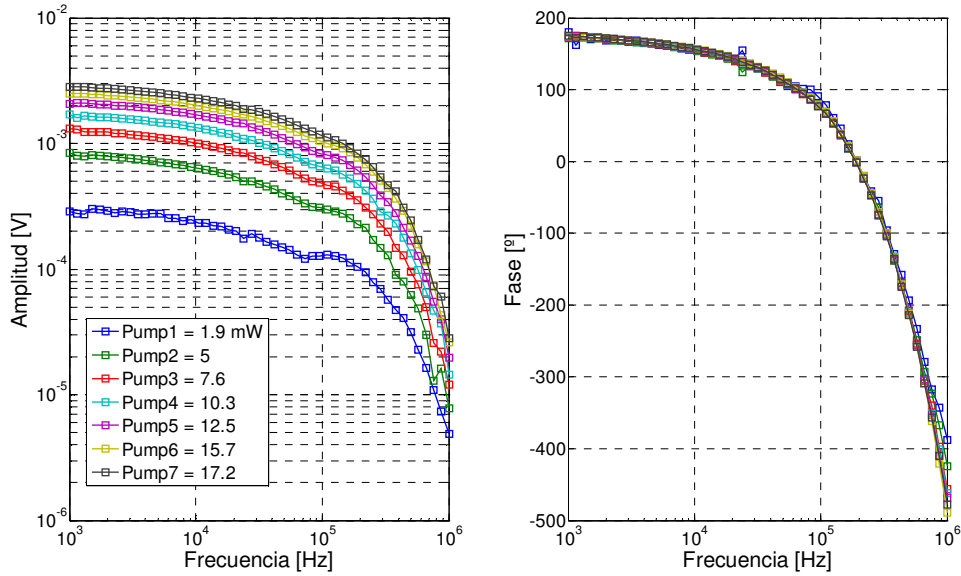
En la figura 5.12 se puede observar el ajuste con el modelo de la curvatura superficial para la misma medición normalizada pero donde solo se ajusta la amplitud de la señal. Se observa que el modelo ajusta correctamente la amplitud de la señal. El valor de la frecuencia de corte es ahora de  $f_0 = (117779 \pm 2018)Hz$ . Nuevamente, utilizando el ajuste del tamaño del haz de excitación se calcula la difusividad térmica con la ecuación de la frecuencia de corte (2.11.2) y se obtiene un valor de  $D = (0.060 \pm 0.002)cm^2/s$  [Domené 2013]. Este nuevo valor, obtenido solo ajustando la amplitud de la señal normalizada, es mucho más cercano al valor tabulado de la difusividad térmica, difiriendo en menos de 10%. Por lo tanto, se concluye que para poder cuantificar adecuadamente la difusividad térmica de la muestra se debe ajustar la amplitud normalizada de la señal.



**Figura 5.12:** Ajuste no lineal con modelo de curvatura para la señal de error de foco en la muestra de Bismuto pulida, normalizada por la fase cero. Se observa que la respuesta en frecuencia del modelo se adecua correctamente a los valores medidos experimentalmente.

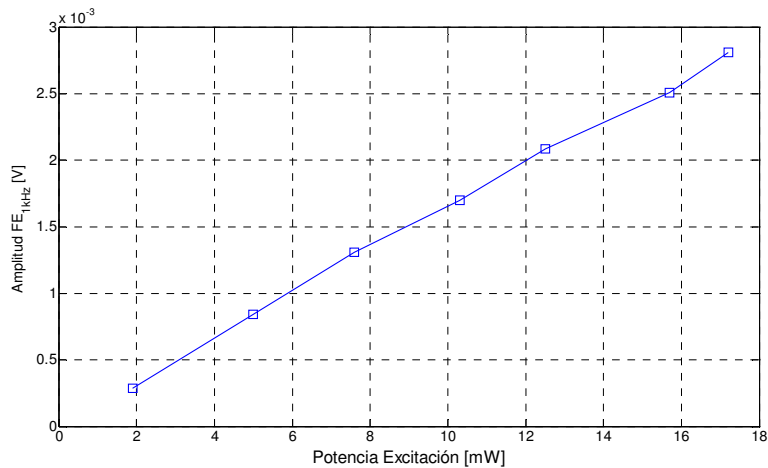
El prototipo armado para caracterizar difusividad térmica, posee la ventaja de ser un método sin contacto, puramente óptico y por ende permite realizar ensayos no destructivos. El único factor que se debe contemplar es el de la potencia de los haces, que puede dañar la muestra (el material puede fundirse, se puede producir ablación láser, etc.). El Bismuto se funde a una temperatura de aproximadamente 150 °C, por lo cuál no se debe alcanzar potencias cuya absorción generen aumentos tales de temperatura. Con esto en mente, se realizó un estudio de la medición de la difusividad térmica en la muestra de Bismuto en función de la potencia del haz de excitación. En la figura 5.13 se grafican los barridos en frecuencia de la señal de error de foco para diferentes potencias del haz de excitación.





**Figura 5.13:** Amplitud y fase de la señal de error en función de la frecuencia de modulación para diferentes potencias del haz de excitación, sobre una muestra de Bismuto pulido.

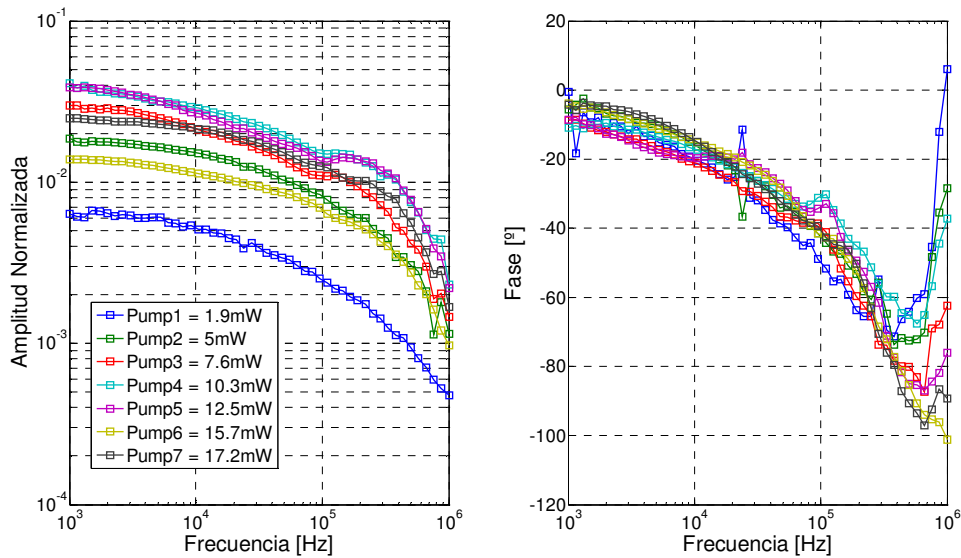
La amplitud de la señal de error de foco medida en el amplificador lock-in crece con la potencia de excitación, como es de esperarse ya que el desenfoque producido por curvatura es proporcional a la potencia de excitación. Para verificar esto, se grafica el valor de la señal de error de foco a una frecuencia de modulación fija de 1 kHz en función de la potencia del haz de excitación (ver figura 5.14). Por otra parte, se observa que las fases de las curvas en la figura 5.13 se solapan todas entre si.



**Figura 5.14:** Amplitud de la señal de error de foco a una frecuencia fija de 1 kHz en función de la potencia del haz de excitación. Se observa un crecimiento lineal de la señal.

Las curvas de amplitud y fase normalizadas en función de la frecuencia, para diferentes potencias del haz de excitación se observan en la figura 5.15. La normalización de cada

una de las curvas se efectúa con la correspondiente fase cero medida a esa misma potencia del láser. El método de medición de la fase cero es análogo al explicado anteriormente, donde se utiliza un filtro FEL0700 a la salida del haz de prueba y retirando el filtro FES0750.



**Figura 5.15:** Curvas de amplitud y fase normalizadas en función de la frecuencia para diferentes potencias del haz de excitación.

El hecho de que las curvas no se superpongan todas en la misma amplitud normalizada se corresponde a que la amplitud de cada una de las fases cero usadas para normalizar la señal error de foco depende de la puntería del haz de excitación sobre el detector de cuatro cuadrantes. Para medir cada una de las fases ceros, se intercala un filtro FEL0700 a la salida del haz de prueba y su inclinación afecta la puntería del haz de excitación sobre el detector de cuatro cuadrantes, cambiando la amplitud medida de la fase cero. Entre mediciones, no se realinean los haces pero si se verifica que ambos se encuentren superpuestos en la cámara CCD y se toman fotos del haz de excitación, a cada potencia, para determinar el tamaño del mismo.

Se puede ver que las fluctuaciones entre las fases normalizadas de las curvas en función de la frecuencia de modulación provienen de fluctuaciones en la fase cero medida ya que en la figura 5.13, todas las fases se superponían entre sí. La variabilidad existente en la medición de la fase cero constituye uno de los puntos fundamentales sobre los cuales se debe trabajar y mejorar para perfeccionar la técnica.

Una posible mejora en el método experimental con el cual se mide la fase cero, es montar el filtro FEL0700 en un posicionador que permita retirar e poner el filtro en el camino de los haces de manera que repita su posición (posicionador magnético). De esta manera, la señal que llega a los fotodiodos del cuatro cuadrantes será la misma en todos los casos, siempre y cuando no se cambie la alineación del haz de excitación. La variación de la respuesta en frecuencia de la fase cero se puede atribuir a la respuesta en frecuencia de los fotodiodos y la saturación de los mismos. Si el haz de excitación incide de forma distinta sobre el cuatro cuadrantes, esto genera cambios en el nivel de señal de cada fotodiodo en particular y puede causar una variación en la señal de fase cero medida. Es necesario realizar una caracterización más exhaustiva de la respuesta de los fotodiodos para lograr minimizar la variación de la fase cero y así disminuir la variabilidad en los valores de difusividad térmica medidos.

Otra solución al problema de la fase cero recae en realizar una medición indirecta de la señal. Para ello, primero se debe realizar una medición de la respuesta en frecuencia de la potencia modulada de ambos haces, el de prueba y el de excitación, con un fotodiodo de área chica y polarizado con una batería (ver sección 4.3 Diodos láser de cabezal de DVD):  $P_{prueba}(\omega)$  y  $P_{excitación}(\omega)$ . Luego se coloca como muestra en el microscopio un espejo dieléctrico para la longitud de onda del haz de prueba ( $\lambda = 658nm$ ). Con el haz de excitación apagado y el haz de prueba modulado en frecuencia se procede a medir en el detector de cuatro cuadrantes la respuesta en frecuencia del haz reflejado en el espejo dieléctrico. Dicha respuesta en frecuencia corresponde al producto entre las respuestas del haz de prueba y la electrónica de la señal FE

$$FE_{EspDielec}(\omega) = P_{prueba}(\omega) \cdot Electrónica(\omega) \quad (4.1)$$

La fase cero que se desea medir no es más que el producto entre la respuesta en frecuencia del haz de excitación y la respuesta en frecuencia de la electrónica de la señal FE. Por ende, la fase cero se obtiene de multiplicar a la medición de la señal de FE con el espejo dieléctrico por el cociente entre la respuesta en frecuencia de la potencia modulada del haz de excitación y el de prueba

$$FaseCero(\omega) = \frac{FE_{EspDielec}(\omega)P_{excitación}(\omega)}{P_{prueba}(\omega)} = P_{excitación}(\omega) \cdot Electrónica(\omega) \quad (4.2)$$

De esta manera es posible obtener la señal de fase cero de forma indirecta y evitar los problemas de puntería del haz de excitación sobre el detector de cuatro cuadrantes.

Una vez obtenidas todas las curvas de amplitud y fase normalizadas para diferentes potencias del haz de excitación, se ajustaron todas las amplitudes usando el modelo de desenfoque por curvatura (ver sección 2.6 Desenfoque por curvatura). Del mismo se obtiene el valor de la frecuencia de corte,  $\omega_0$ . Luego, con las imágenes tomadas con la cámara CCD, se determina el tamaño del haz a través de un ajuste Gaussiano bidimensional. En la tabla 5.3 se pueden ver los resultados de los ajustes realizados, y el valor calculado de la difusividad térmica de la muestra (se agrega el valor de difusividad hallado para una potencia de 15.7 mW, de la figura 5.12. Recordando que el valor tabulado para la difusividad térmica del Bismuto es de 0.066 cm<sup>2</sup>/s, es interesante notar que ningún valor obtenido para la difusividad difiere del valor tabulado en más del 14% (la máxima diferencia es de 9% por arriba del valor tabulado y menos que 14% por abajo). La dispersión de valores de difusividad térmica obtenidos oscila entre 0.057 y 0.072 cm<sup>2</sup>/s. Dicha dispersión es uno de los temas sobre los cuales se debe trabajar. Como dicho anteriormente, el mayor problema se encuentra en la medición de la fase cero. Además, en una menor medida, contribuyen temas de estabilidad de potencia y estabilidad de los haces de excitación y de prueba. Esto último es posible resolverlo utilizando diodos láser acoplados a fibra y con una electrónica de control que establezca la potencia de los mismos.

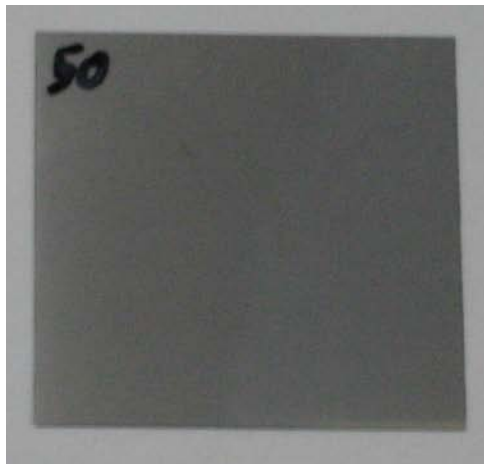
| $P_{excitación}$ [mW] | $\omega_0$ [Hz] | $\sigma^2$ [ $\mu\text{m}^2$ ] | $D$ [cm <sup>2</sup> /s] |
|-----------------------|-----------------|--------------------------------|--------------------------|
| 1.9                   | 72188           | 29.7                           | 0.067                    |
| 5                     | 88727           | 24.7                           | 0.069                    |
| 7.6                   | 79438           | 22.92                          | 0.057                    |
| 10.3                  | 108732          | 20.94                          | 0.072                    |
| 12.5                  | 107945          | 18.68                          | 0.063                    |
| 15.7                  | 117779          | 16.23                          | 0.060                    |
| 17.2                  | 128527          | 16.16                          | 0.065                    |

**Tabla 5.3:** Valores ajustados de frecuencia de corte ( $\omega_0$ ) y tamaño del haz de excitación ( $\sigma^2$ ) para diferentes potencias de excitación. A partir de los valores ajustados se calcula la difusividad térmica,  $D$ .

Con tan solo 2 mW de potencia sobre la muestra, se obtiene una difusividad térmica de 0.067 cm<sup>2</sup>/s (difiere en menos de 2% con el valor tabulado). Esto avala la posibilidad de utilizar esta técnica para ensayos no destructivos.

## 5.2 Medición de difusividad térmica – Vidrio.

La segunda muestra elegida para caracterizar es un cubreobjetos de vidrio de  $\sim 100 \mu\text{m}$  de espesor. Para poder aumentar tanto la reflectividad como la absorción del mismo, se realiza un recubrimiento de la superficie con una delgada película de Platino. El recubrimiento se efectúa utilizando un blanco de Platino de alta pureza en una máquina de *sputtering* (equipo que permite depositar películas delgadas de un material, en general metales, sobre un sustrato a través del bombardeo de un blanco con iones). De esta manera es posible depositar películas delgadas de distintos espesores controlando el tiempo. En la figura 5.16 se observa una de las muestras utilizadas, un cubreobjetos de vidrio con un recubrimiento de Pt de 50 segundos que se corresponde con un espesor aproximado de  $(4.5 \pm 0.5) \text{ nm}$ .



**Figura 4.16:** Cubreobjetos de vidrio recubierto por una película delgada de Platino. El espesor de la película delgada es de aproximadamente  $(4.5 \pm 0.5) \text{ nm}$ .

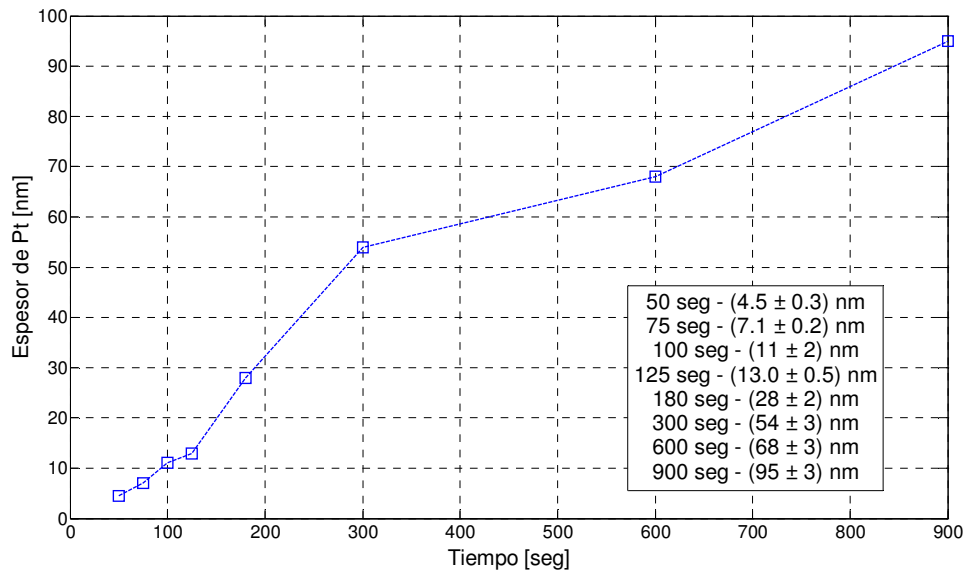
En la tabla 5.4 se presentan valores tabulados de propiedades tanto térmicas como no térmicas del vidrio BK7 y del Platino. En general los cubreobjetos de vidrio son de vidrio borosilicatado (*borosilicate glass*), similares al BK7.

| <b>Propiedades Físicas</b>               | <b>BK7</b> | <b>Platino</b> |
|--|------------|----------------|
| Coeficiente de Expansión [1/K]           | 7.1E-06    | 8.8E-06        |
| Densidad [g/cm <sup>3</sup> ]            | 2.51       | 21.45          |
| Calor Específico [J/(kg°C)]              | 858        | 130            |
| Conductividad Térmica [W/(m°K)]          | 1.11       | 7.92           |
| Difusividad Térmica [cm <sup>2</sup> /s] | 0.0052     | 0.26           |

**Tabla 5.4:** Propiedades físicas del vidrio BK7 y del Platino.

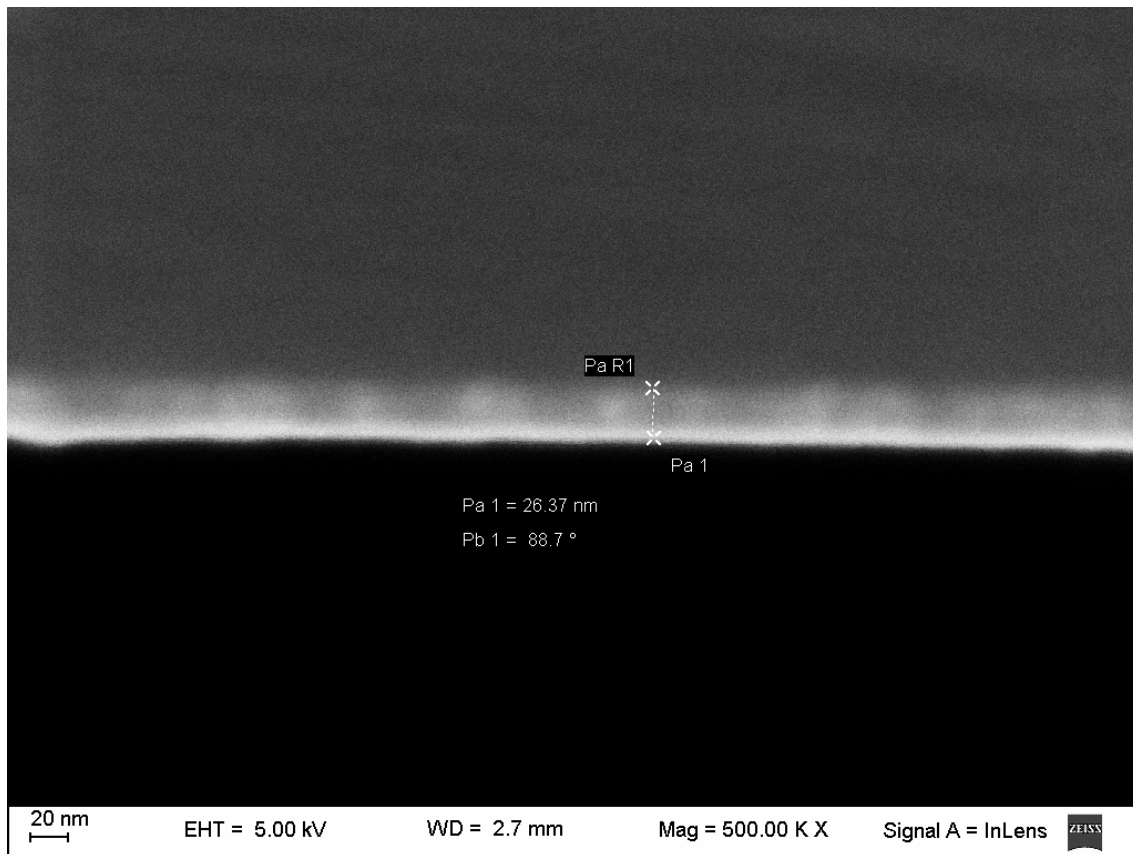
En una primera instancia, se depositaron diferentes espesores de Platino sobre cubreobjetos de vidrio y se midieron los espectros de transmisión de cada uno de ellos utilizando un espectrofotómetro Shimadzu UV-1800. Luego, para cuantificar el espesor de las películas delgadas se realizaron ajustes de los espectros de transmisión obtenidos siguiendo un trabajo de [Chambouleyron 1997]. En dicho trabajo se expresa el espectro de transmisión de una película delgada depositada sobre un sustrato transparente en función de la longitud de onda, el índice de refracción del sustrato transparente (se puede obtener del espectro de transmisión del sustrato solo), la parte real del índice de refracción del material de la película delgada, el coeficiente de extinción (depende de la parte imaginaria del índice de refracción) y del espesor de la película depositada. Cabe destacar que la transmisión proviene de resolver el problema de un haz que incide sobre una superficie semitransparente a incidencia normal y con condiciones de borde adecuadas obtener expresiones para el haz reflejado y el haz transmitido.

Para ser más preciso, en vez de utilizar los datos tabulados de la parte real e imaginaria del índice de refracción del Platino en volumen (*bulk*), se buscaron datos experimentales de dichos parámetros medidos en películas delgadas. En particular se usaron datos medidos por [Goddard 2008] para una película delgada de 11.83 nm de espesor. Estos datos experimentales, conjuntamente con la expresión de la transmisión de una película delgada depositada sobre un sustrato transparente permiten estimar el espesor de las películas depositadas, el cual depende del tiempo utilizado en la máquina de *sputtering*. Se realizaron muestras para 5 tiempos diferentes: 50, 100, 300, 600 y 900 segundos. En cada caso se midió el espectro de transmisión y se buscó el rango de espesores cuyas transmisiones calculadas con el modelo del trabajo de Chambouleyron ajustaban satisfactoriamente. En la figura 5.17 se puede ver el espesor ajustado de la película delgada en función del tiempo de *sputtering* utilizado. Aunque el espesor aumenta con el tiempo, no se observa una relación lineal entre ambos.



**Figura 5.17:** Espesor ajustado por modelo de transmisión de películas delgadas de Pt en función del tiempo de *sputtering*.

Los espesores para tiempos de 50, 75, 100, 125, 180 segundos fueron repetidos sobre pedazos de silicio pulido (para tener un sustrato listo con poca rugosidad superficial) y los espesores fueron medidos con un microscopio electrónico de barrido SEM (resolución mínima típica de  $\sim 3$  nm). La medición se realiza determinando la frontera entre el sustrato de Si y la película de Pt (ver figura 5.18).



**Figura 5.18:** Imagen tomada con un microscopio SEM de una película de Pt (tiempo de *sputtering* de 180 seg.) sobre un sustrato de Si pulido. En la misma se determina el espesor de la película utilizando cursores que determinan las fronteras del Pt, obteniendo un valor de 26.37 nm. (imagen tomada por Silvio Ludueña en el Centro de Microscopías Avanzadas del Departamento de Física, FCEyN, UBA).

En la tabla 5.5 se pueden observar los espesores de las películas de Pt determinados ajustando los espectros de transmisión y a través de las imágenes del microscopio SEM. Dicha técnica posee un error de apreciación grande que puede explicar las diferencias observadas. Es notoria la diferencia que se observa para la muestra con 100 segundos de tiempo de *sputtering*. Hay que aclarar que para poder ver el borde de la muestra es necesario partir la muestra y dicho proceso puede alterar el corte que se desea medir. Igualmente los valores están en el mismo orden de magnitud para todos los casos. En el resto de la tesis se usarán, para identificar a las diferentes muestras, los espesores obtenidos con el ajuste de los espectros de transmisión.



| <b>Tiempos de sputtering [seg]</b> | <b>Espectro de Transmisión [nm]</b> | <b>SEM [nm]</b> |
|------------------------------------|-------------------------------------|-----------------|
| 50                                 | (4.5 ± 0.3)                         | 6.45            |
| 75                                 | (7.1 ± 0.2)                         | 12.89           |
| 100                                | (11 ± 2)                            | 13.78           |
| 125                                | (13.0 ± 0.5)                        | 22.85           |
| 180                                | (28 ± 2)                            | 26.37           |

**Tabla 5.5:** Datos de ajustes de espesor de películas delgadas de Pt para diferentes tiempos de *sputtering* determinados por dos métodos: ajuste de espectros de transmisión e imágenes de microscopio SEM.

Es importante notar que la capa de Platino debe ser lo suficientemente delgada para poder despreciar el flujo de calor por la misma. De esta manera, el Platino absorbe parte de la potencia del haz de excitación y el calor generado se conduce hacia el vidrio, donde se espera inducir una expansión térmica y consecuentemente una curvatura superficial. En la sección 2.7 Flujo de calor, se calcula el cociente del flujo de calor entre dos superficies que sufren un mismo incremento de temperatura. El flujo en la primera capa, por ser muy delgada, se asume cilíndrico mientras que en la segunda capa, dependiendo de la frecuencia, pasa de un flujo esférico a uno plano. El análisis de ambos casos (frecuencias menores y mayores a la frecuencia de corte), permiten poner una cota superior al cociente de los flujos de calor (ecuación (2.49)) que puede ser aplicada al caso de una película delgada de Platino sobre un sustrato de vidrio, que por conveniencia se asume de BK7:

$$\frac{\dot{Q}_{Pt}}{\dot{Q}_{BK7}} \leq \frac{\kappa_{Pt} h}{\kappa_{BK7} \sigma_{Pump}} \quad (4.3)$$

donde  $\kappa_{Pt}$  y  $\kappa_{BK7}$  son las conductividades del Platino y del vidrio BK7 respectivamente,  $h$  es el espesor de la película delgada y  $\sigma_{Pump}$  es el tamaño del haz de excitación. Utilizando los valores tabulados de la conductividad y un tamaño aproximado de 4  $\mu\text{m}$  para el haz de excitación se obtiene

$$\frac{\dot{Q}_{Pt}}{\dot{Q}_{BK7}} \leq 0.016 \frac{1}{\text{nm}} h \quad (4.4)$$

Para una película de 1 nm de espesor, se tiene que el flujo de calor por la capa de Platino es menor al 2% del flujo a través del vidrio. En la tabla 5.6 se muestran los cocientes calculados para los 5 espesores de Platino depositados sobre cubreobjetos de vidrio.

| <b><i>Espesor Platino [nm]</i></b> | <b><i>Cociente Flujo de Calor</i></b> |
|------------------------------------|---------------------------------------|
| 4.5 ± 0.3                          | 0.07                                  |
| 7.1 ± 0.2                          | 0.11                                  |
| 11 ± 2                             | 0.18                                  |
| 13.0 ± 0.5                         | 0.21                                  |
| 16 ± 2                             | 0.26                                  |
| 54 ± 3                             | 0.86                                  |
| 68 ± 3                             | 1.09                                  |
| 95 ± 3                             | 1.52                                  |

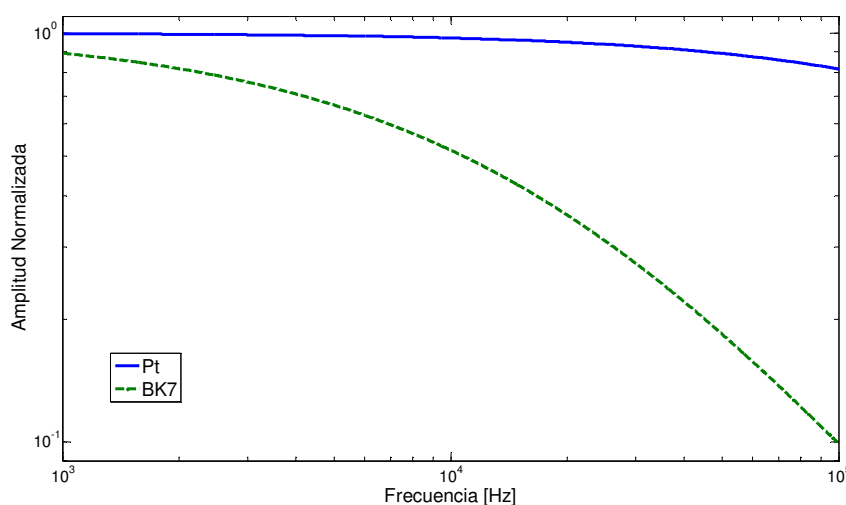
**Tabla 4.6:** Cociente del flujo de calor entre la película de Platino y el sustrato de vidrio para diferentes espesores de Platino.

Se puede ver que el cociente entre los flujos de calor es muy dependiente del espesor de la capa de Platino depositada. Para la muestra con una capa de (4.5 ± 0.3) nm, el flujo de calor por el Platino es solo el 7% del flujo de calor por el vidrio, mientras que para la muestra con una película delgada de (95 ± 3) nm, el flujo de calor por el Platino es 152% del flujo de calor por el vidrio.

Con estos resultados, a medida que aumenta el espesor del Pt el flujo de calor en el vidrio disminuye y en la respuesta térmica del sistema Pt-vidrio empieza a contribuir cada vez más la presencia de la película depositada de Pt. Esta consecuencia es justo lo contrario de lo que se pretende lograr con la presencia de Pt, cuyo objetivo original es aumentar la reflexión y la absorción a las longitudes de onda del haz de prueba y de excitación, respectivamente. Y para espesores de Pt menores a 6 nm, el flujo de calor en el Pt es menor al 10% del flujo dentro del vidrio, con lo cual se puede despreciar su contribución al desenfoque del haz de prueba.

Igualmente, aún para espesores de Pt grandes, donde la mayoría del flujo de calor circula por el Pt y no por el vidrio, la respuesta en frecuencia del desenfoque estará dominada por el vidrio en un cierto rango de frecuencias debido a la diferencia entre las

frecuencias de corte de ambos materiales. Con un haz de excitación de aproximadamente  $4\ \mu\text{m}$ , se obtiene para la difusividad del Pt ( $0.26\ \text{cm}^2/\text{s}$ ) una frecuencia de corte mayor a  $500\ \text{kHz}$ ; para la difusividad del vidrio BK7 ( $0.0052\ \text{cm}^2/\text{s}$ ) una frecuencia de corte mayor a  $10\ \text{kHz}$ . Para poder ajustar correctamente las mediciones por la respuesta en frecuencia del modelo de desenfoque por curvatura, se requiere por lo menos medir un orden por abajo y por arriba de la frecuencia de corte. En este caso alcanzaría con ajustar datos desde  $1$  hasta  $100\ \text{kHz}$ . Y como la frecuencia de corte del Pt se encuentra por arriba de los  $500\ \text{kHz}$ , la contribución a la señal será muy chica, ya que la amplitud de la señal correspondiente al Pt cambia muy poco en dicho rango de frecuencias. En la figura 5.19 se pueden observar las curvas correspondientes a la amplitud del modelo de desenfoque por curvatura (ver sección 2.6 Desenfoque por curvatura) para la frecuencia de corte del Pt y para la del BK7. Se puede ver que entre  $1$  y  $100\ \text{kHz}$ , la señal correspondiente al Pt cambia un  $18\%$  del valor en  $1\ \text{kHz}$ , mientras que para el BK7 el cambio es del  $89\%$ . Esto justificaría que aunque el flujo de calor se propague mayoritariamente por el Pt, debido a la gran diferencia entre las frecuencias de corte, la respuesta en frecuencia de la señal en el rango estudiado está dominada por el vidrio. En consecuencia, se espera que las difusividades térmicas que provengan del ajuste se correlacionen adecuadamente con los valores del vidrio y no del Pt. Igualmente, una mayor contribución del Pt se traduciría en un aumento de la frecuencia de corte, y por ende en un mayor valor de difusividad térmica.



**Figura 5.19:** Respuesta en frecuencia del modelo de desenfoque por curvatura para Pt y para vidrio BK7.

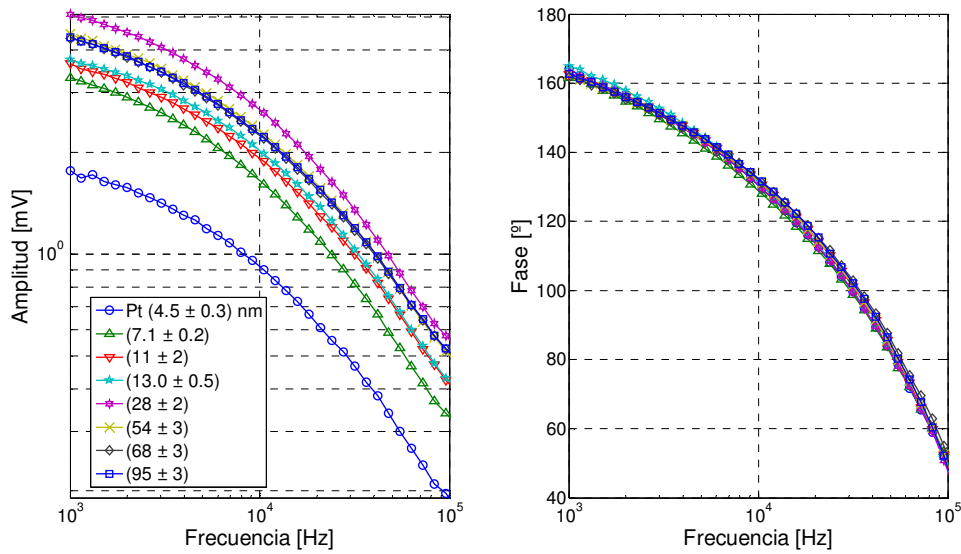
Solo se muestra la amplitud normalizada en el rango entre  $1$  y  $100\ \text{kHz}$ . La amplitud es tal que a bajas frecuencias tiende a  $1$ .

Para estudiar estas hipótesis se realizaron mediciones en todas las muestras con distintos espesores de Pt. Todas las mediciones se realizaron con la misma potencia del haz de excitación (15.7 mW) y del haz de prueba (3.5 mW). El protocolo de medición para cada muestra es análogo al utilizado para la muestra de Bismuto pulida. Primero se coloca la muestra en la platina del microscopio y se busca, moviendo el eje z del microscopio y monitoreando la señal error de foco en el osciloscopio, la curva característica en forma de “S”. Luego se elige el punto medio del rango lineal, donde la señal error de foco se anula. Para dicha posición del objetivo, iluminando la muestra con un LED Luxion 470 nm se mueve la cámara CCD hasta ver la muestra en foco. En dicho plano, usando la cámara CCD, se solapa el haz de excitación (modulado por un generador de funciones) con el haz de prueba y se toma una imagen del haz de excitación para ajustar por una Gaussiana bidimensional (ver tabla 5.7).

| <i>Espesor Pt [nm]</i> | $\sigma_1$ [ $\mu\text{m}$ ] | $\sigma_2$ [ $\mu\text{m}$ ] | $\sigma_1\sigma_2$ [ $\mu\text{m}^2$ ] |
|------------------------|------------------------------|------------------------------|--|
| $4.7 \pm 0.3$          | 2.97                         | 5.68                         | 16.84                                  |
| $7.1 \pm 0.2$          | 2.96                         | 5.64                         | 19.72                                  |
| $11 \pm 2$             | 3.06                         | 6.11                         | 18.71                                  |
| $13.0 \pm 0.5$         | 2.93                         | 5.85                         | 17.15                                  |
| $28 \pm 2$             | 2.96                         | 6.17                         | 18.26                                  |
| $54 \pm 3$             | 2.90                         | 5.84                         | 16.94                                  |
| $68 \pm 3$             | 2.98                         | 6.01                         | 17.91                                  |
| $95 \pm 3$             | 2.92                         | 5.96                         | 17.42                                  |

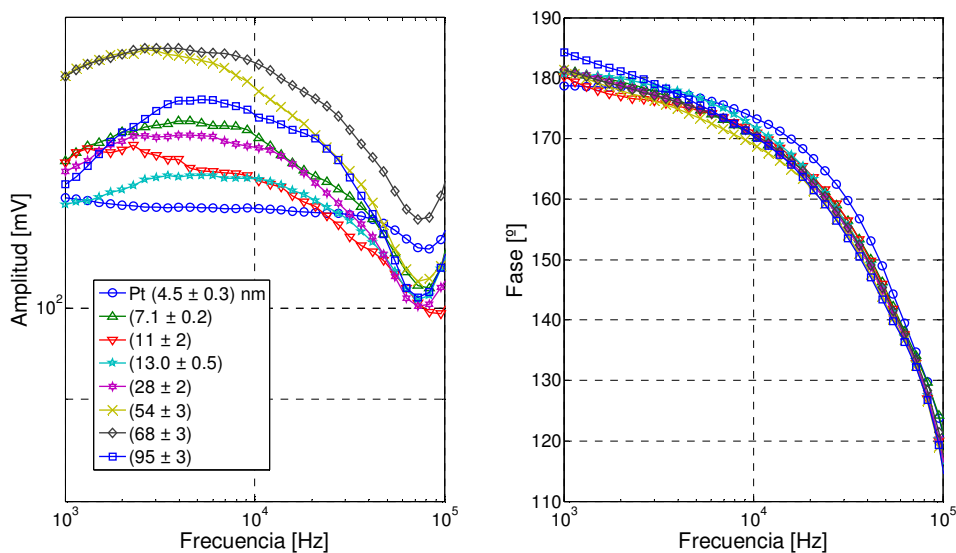
**Tabla 5.7:** Valores del ajuste Gaussiano bidimensional del haz de excitación para diferentes espesores de Pt sobre cubreobjetos de vidrio. Los valores de  $\sigma_1$  y  $\sigma_2$  corresponden a los tamaños en los ejes de la elipse.

Con ambos haces encendidos y solapados, se mide la respuesta en frecuencia de la señal de error de foco con un amplificador lock-in Anfatec AMU2.4. El barrido se efectúa entre 1 kHz y 1 MHz, con las frecuencias espaciadas en forma logarítmica, pero por lo mencionado anteriormente solo se muestran las curvas en el rango de 1 a 100kHz. En la figura 5.20 se observan la amplitud y fase de la señal de error de foco en función de la frecuencia para distintos espesores de Pt sobre cubreobjetos de vidrio.



**Figura 5.20:** Barridos en frecuencia de amplitud y fase de la señal de error de foco para diferentes espesores de Pt sobre cubreobjetos de vidrio.

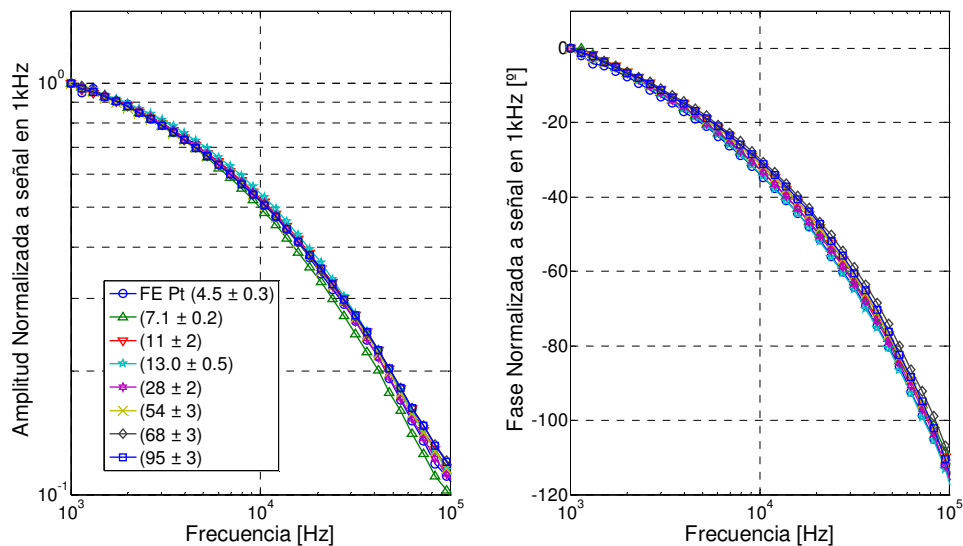
Una vez finalizado el barrido, se remueve el filtro FES0750, se intercala a la salida del haz de prueba un filtro FEL0700 y se realiza un nuevo barrido en frecuencia de la señal de error de foco. Dicho barrido se corresponde a la fase cero que sirve para normalizar la medición e independizarse de la respuesta en frecuencia de la electrónica, los cables, los equipos y la modulación del haz de excitación (ver figura 5.21).



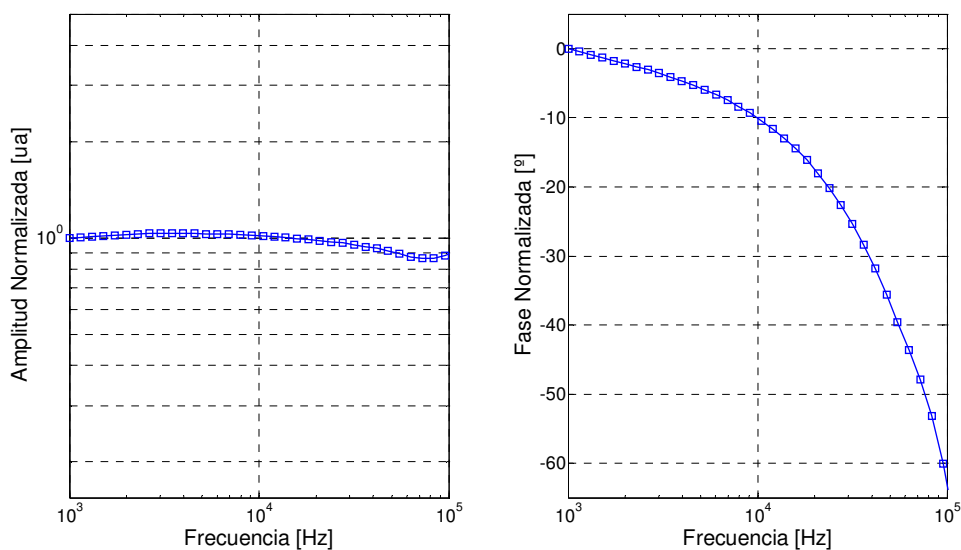
**Figura 5.21:** Barridos en frecuencia de amplitud y fase de la fase cero para diferentes espesores de Pt sobre cubreobjetos de vidrio.

Nuevamente, como en el caso del bismuto, se observa cierta variabilidad en la amplitud y fase de las distintas curvas de fase cero. Dado que la potencia de los haces no se modifica entre muestra y muestra, ni la alineación de los haces, la fase cero no debería cambiar. Además, se observa que las curvas de error de foco para los distintos espesores poseen una caída muy similar entre ellas y que las fases se solapan entre si. Esto último indicaría que la respuesta en frecuencia del material es la misma en todas las muestras, y que corresponde a la misma difusividad térmica, la del cubreobjetos de vidrio.

Si se normaliza cada muestra con su fase cero propia, se obtiene una difusividad media de  $0.0070 \text{ cm}^2/\text{s}$  con una dispersión del 53% (entre el mínimo y máximo valor hallado). Cabe aclarar que la difusividad térmica del vidrio BK7 es de  $D_{\text{BK7}} = 0.0052 \text{ cm}^2/\text{s}$  (la difusividad térmica de los vidrios más comunes fluctúa entre  $0.0043$  y  $0.0089 \text{ cm}^2/\text{s}$ ). De analizar las curvas de la señal FE normalizadas al valor de la señal en 1 kHz para las distintas muestras (ver figura 5.22), resulta evidente que dicha dispersión proviene de la variabilidad de la fase cero y no de las mediciones de la señal FE. Por lo tanto, para poder normalizar todas las mediciones con la misma fase cero, se realiza un promedio de todas las fase cero medidas (ver figura 5.23).



**Figura 5.22:** Curvas de señal FE para cubreobjetos de vidrio con distintos espesores de Pt. Las curvas se normalizan al valor de la señal en 1 kHz para poder comparar las curvas.



**Figura 5.23:** Promedio de las fases cero de los cubreobjetos de vidrio con diferentes espesores de Pt.

Con dicha curva promediada se normalizaron las mediciones de los cubreobjetos con diferentes espesores de Pt. De los datos ajustados de la frecuencia de corte y los ajustes Gaussianos bidimensionales del haz de excitación se extraen los valores correspondientes a la difusividad térmica del vidrio (ver tabla 5.8). Con dicha normalización se obtiene una difusividad térmica media de  $0.0066 \text{ cm}^2/\text{s}$  con una dispersión de 18% (entre el mínimo y máximo valor hallado).

| <i>Espesor Pt [nm]</i> | <i>D [10<sup>-3</sup> cm<sup>2</sup>/s]</i> |
|------------------------|---|
| $4.7 \pm 0.3$          | $(6.0 \pm 0.6)$                             |
| $7.1 \pm 0.2$          | $(6.2 \pm 0.6)$                             |
| $11 \pm 2$             | $(7.2 \pm 0.6)$                             |
| $13.0 \pm 0.5$         | $(6.3 \pm 0.6)$                             |
| $28 \pm 2$             | $(6.3 \pm 0.6)$                             |
| $54 \pm 3$             | $(6.4 \pm 0.6)$                             |
| $68 \pm 3$             | $(6.9 \pm 0.6)$                             |
| $95 \pm 3$             | $(7.0 \pm 0.6)$                             |

**Tabla 5.8:** Valores ajustados de difusividad térmica en muestras con distintos espesores de Pt sobre un cubreobjetos de vidrio.

Nuevamente se ve la necesidad de realizar un estudio exhaustivo estudiando el porque de la variabilidad en la fase cero. El hecho de que las mediciones de la señal de error de foco sean muy similares para todas las muestras, permite concluir dos cosas: que la magnitud térmica que gobierna la respuesta en frecuencia es la misma en todos los casos

apoyando la teoría de que en el rango de 1 a 100 kHz la presencia de la película de Pt no repercute en la medición; que la variabilidad en las difusividades térmicas halladas proviene en gran medida de las diferencias entre las fases cero medidas (no hay que descartar que el ajuste del tamaño del haz de excitación también varía, con una dispersión del 16%, y que las curvas de la señal FE no son exactamente iguales).

Igualmente, es importante notar que los valores obtenidos de la difusividad térmica caen dentro del rango de valores típicos de difusividad para vidrio. Esto demuestra el potencial de la técnica para extraer el valor de la difusividad térmica de la muestra, con resolución micrométrica (determinada por el tamaño del haz de excitación). Además al ser un método puramente óptico, resulta más que adecuada para realizar ensayos no destructivos.



## **Capítulo 6:**

### **Conclusiones.**

Existen en la literatura varias técnicas diferentes que permiten caracterizar propiedades térmicas con resolución espacial microscópica [Bincheng 1999, Opsal 1983, Rochais 2005, Rosencwaig 1983, Salazar 1991]. La mayoría se basa en utilizar un láser de excitación para calentar la muestra y luego un segundo haz de prueba mide la respuesta térmica del material: termorefectancia (cambio de reflectividad con la temperatura) o fotodeflexión. Dichas técnicas tienen restricciones muy estrictas sobre la estabilidad de la puntería de ambos haces.

En la presente tesis doctoral se desarrolla una técnica experimental basada en una señal error de foco sensible al desenfoque generado por la curvatura de la superficie. El esquema de detección consiste en un haz astigmático de prueba y un detector de cuatro cuadrantes. La señal de error de foco se genera a partir del desbalance entre las diagonales del detector, obteniendo una señal proporcional al desenfoque del haz. Por construcción, la señal de error de foco no es sensible a efectos de termorefectancia. Contribuciones de fotodeflexión se anulan asegurando colinealidad de los haces. Aunque este último requisito no se pueda cumplir, se demuestra que ajustando solo la amplitud de los barridos en frecuencia de la señal de error de foco, la presencia de fotodeflexión no altera significativamente los ajustes. Con lo cual, aún si los haces no son perfectamente colineales, es posible extraer satisfactoriamente valores de difusividad térmica con resolución microscópica. Cabe aclarar que la pérdida de información de la fase de la señal no permite realizar mapas de difusividad térmica midiendo a una frecuencia de modulación fija [Crossa Archiopoli 2011]. El trabajo se

enfoca en particular a la medición de difusividad térmica en superficies pulidas de materiales tanto que reflejan, son transparentes u opacos a las longitudes de onda de los haces de excitación y de prueba.

Un primer trabajo, donde la técnica de error de foco se utiliza para caracterizar pérdidas en nanoestructuras permitiendo discriminar entre absorción y dispersión [Domené 2009], sirve como evidencia de la potencialidad de la técnica. En dicho caso, un cabezal de una lectora de CD se utiliza para medir la curvatura de la expansión térmica de la muestra que resulta proporcional a la potencia absorbida por la muestra. De esta manera resulta posible determinar en forma directa la absorción y así discernir entre pérdidas por dispersión o por absorción. La técnica se emplea en películas delgadas de Au, depositadas sobre cubreobjetos de vidrio usando una configuración de Kretschmann, donde el ángulo de incidencia supera el ángulo crítico, y por ende es posible excitar plasmones superficiales sobre la superficie de Au (se excita la muestra con una onda evanescente que se propaga por la superficie). Los resultados experimentales obtenidos muestran que las pérdidas por dispersión no son despreciables y que se deben contemplar en los modelos teóricos que se utilizan para ajustar curvas de pérdidas con el fin de extraer constantes ópticas de materiales.

Como segunda aplicación de la técnica, se utiliza la señal de error de foco para medir difusividad térmica. En particular, se estudia una muestra de Bi y un cubreobjetos de vidrio. En el caso del vidrio, se deposita una película delgada de Pt que sirve tanto para reflejar el haz de prueba, como para aumentar la absorción a la longitud de onda del haz de excitación. Este resultado avala el uso de la técnica en muestras opacas o transparentes. La señal de error de foco permite cuantificar la curvatura de la expansión térmica superficial inducida por la absorción de un haz de excitación modulado. Se realizan mediciones de la respuesta en frecuencia de la curvatura superficial, barriendo la frecuencia de modulación del haz de excitación.

Del ajuste de la amplitud de dichos barridos se extrae el valor de la frecuencia de corte  $\omega_0$  que solo depende de la difusividad térmica y del tamaño del haz de excitación. Aunque ambos haces poseen astigmatismo inherente, se observa que ajustando por un modelo de curvatura con haces sin astigmatismo se recupera de forma adecuada los valores de difusividad térmica de las muestras. Suponiendo solo astigmatismo en el haz

de excitación, se observa que la señal FE es proporcional al promedio de los radios de curvatura de la deformación superficial inducida. Dicho promedio posee una respuesta en frecuencia que se asemeja a la respuesta en frecuencia del radio de curvatura sin astigmatismo. Esto permite, a primer orden, explicar el porque es posible ajustar los datos experimentales con un modelo de curvatura sin astigmatismo.

Luego introduciendo astigmatismo en el haz de prueba, se obtiene un promedio de la suma de la contribución de la inversa del radio de curvatura en cada uno de los ejes del astigmatismo del haz de excitación, pero con pesos distintos. El peso de la contribución del radio de curvatura en cada eje depende del plano donde se este observando y del propio astigmatismo del haz de prueba. Para los haces utilizados en los experimentos de esta tesis, se puede estimar que al ajustar los datos con un modelo sin astigmatismo el error que se comete en la determinación de la frecuencia de corte es del orden de un 12%. Dicho error repercute de forma directa en la determinación de la difusividad térmica de la muestra a caracterizar.

Una de las principales ventajas de la técnica es la posibilidad de ajustar las mediciones a una sola respuesta térmica del material: curvatura superficial. El hecho de realizar ajustes con menor número de parámetros hace que los resultados obtenidos resulten más confiables. Como mencionado anteriormente, la contribución de termorefectancia se anula en la señal de error de foco, midiendo en la posición de foco, donde las diagonales del detector de cuatro cuadrantes están balanceadas, mientras que la fotodeflexión aunque esté presente no altera significativamente la amplitud de la señal.

Para resolver el tema de la colinealidad de los haces se sugiere, como mejora al dispositivo, usar diodos láser acoplados a fibra. De esta manera, combinando ambos haces en una misma fibra con un acoplador de fibra, se asegura la colinealidad y se anula cualquier contribución de fotodeflexión. Dicha solución requiere cambiar el esquema de detección, ya que el astigmatismo no estará presente en el haz de prueba y debe ser generado usando una lente cilíndrica delante del detector de cuatro cuadrantes. La implementación de dichas mejoras al sistema aseguraría que la señal medida solo posea contribuciones del desenfoque por la curvatura superficial, permitiendo hacer uso de la fase de la señal para medir mapas bidimensionales de difusividad térmica a una frecuencia de modulación fija. Además, el hecho de utilizar diodos láser acoplados a

fibra sin astigmatismo permite disminuir el error cometido en el ajuste de los datos ya que se pueden utilizar modelos de haces circulares. Esto mejora la precisión con la cual se puede extraer la difusividad térmica de la muestra a caracterizar.

Otro problema que queda por resolver es el de la fase cero. Las fluctuaciones observadas pueden ser producto de la respuesta de los fotodiodos del cuatro cuadrantes o del método experimental utilizado. Al pasar a un sistema de diodos láser acoplados a fibra, se evitan problemas de puntería y alineación de los haces. Con el esquema experimental actual se debe asegurar la repetibilidad de la alineación de los haces al realizar la medición de la fase cero utilizando posicionadores magnéticos para los filtros. Otra opción es realizar una medición indirecta de la fase cero. Además es necesario estudiar los niveles de señal de cada uno de los cuadrantes por separado y sus respuestas en frecuencia para estudiar de donde provienen las fluctuaciones observadas en las curvas de fase cero medidas.

Con la electrónica actual que genera la señal de error de foco, se logra una resolución axial subnanométrica. Un desenfoco de 1 nm, medible con la señal de FE, se corresponde a un radio de curvatura de 15 m y a una expansión térmica de apenas 0.2 pm. Esto equivale a un aumento de temperatura de apenas unos mK, lo que muestra el gran potencial de la técnica en ensayos no destructivos.

Dicha resolución y la relación señal-ruido se pueden mejorar utilizando amplificadores operacionales de bajo ruido. De esta manera, se puede esperar caracterizar muestras cuya respuesta térmica sea menor o disminuir los niveles de potencia de excitación necesarios.

En conclusión, se ha logrado desarrollar una técnica fototérmica sin contacto, no destructiva, con una resolución axial subnanométrica, resolución lateral microscópica y una sensibilidad del orden de  $\sim 1 \mu\text{m}/\text{V}$  capaz de medir difusividad térmica en muestras aun opacas o transparentes.

## **Agradecimientos.**

De antemano pido perdón por la extensión de esta sección, pero no puedo no agradecer a la gente que me acompañó en estos 6 años de trabajo. Así que me tomo la libertad de explayarme y brindarle a cada uno un espacio particular.

En primer lugar, no puedo dejar de agradecer a mi familia. Sin ellos nada de esto hubiese sido posible, no solo por el carácter existencial de la procreación, sino por todo lo que viene después. El apoyo incondicional de mis viejos para bancarme en todas mis ideas descabelladas y por abrirme las puertas a la posibilidad de estudiar. Más aún, estudiar física. Pude estudiar sin trabajar gracias al esfuerzo diario de mis padres. Nunca menosprecie semejante oportunidad y por eso esta tesis se la dedico a ellos. En particular a mi madre Liliana, con la cual me siento muy identificado como persona. Es la responsable de mi personalidad, buena o mala, de mi paciencia y entusiasmo para la educación. Una de las personas más capaz que conozco y un verdadero ejemplo en la vida, tanto académica, laboral como personal. A mi padre Horacio, por estar siempre conmigo y motivar juntos delirios a veces inconcebibles. Por compartir tantos viajes de pesca desde chiquito, por sufrir y festejar con la misma camiseta puesta y por siempre educar con el ejemplo propio. Aunque trillado, si pudiese elegir a mis padres, los elegiría a ellos. A mi hermana Sabina, una persona con un corazón enorme, que siempre le pone pilas a todo, que siempre estuvo y esta. A ella le debo mi buen adoctrinamiento musical, desde temprana edad. Siempre me abrió las puertas a su vida y por eso le estoy eternamente agradecido. Por tantas cenas familiares pasadas y futuras.

A mis abuelos. Los que están, Jorge e Irene, y los que no, Rafael y Regina. A ellos les debo tanto por alimentar mi infancia de recuerdos felices. A mi primo Ramiro y mi tía Silvia, por tantos viajes juntos a Saladillo y Mar del Plata. A mi prima Paula y tía Alicia por tantas buenas panzadas.

A Oscar y Andrea por abrirle las puertas del LEC a un estudiante curioso. A Oscar por estar siempre presente, por siempre tener tiempo para discutir ideas. Por tener siempre presente el trabajo de uno y por guiarme en un camino sinuoso que creo que ha llegado a buen puerto. A Andrea por siempre tratarme como un par, por darme un espacio para discutir y por formarme tanto como científico como persona (por ser un poco la madre de todos en el LEC).

A la gente del LEC. En particular no quiero dejar de mencionar a Maxi y Edu, fieles compañeros de constantes mateadas, amigos, confidentes, tanto en lo laboral como lo personal. Gracias por todo, en especial por la ayuda con los circuitos, entenderlos, diseñarlos, armarlos. A Alberto, otro amigo dentro del laboratorio, con el cual tuve el gusto de compartir más de un viaje. Una persona increíble, un ejemplo como científico, y alguien que siempre está para evacuar dudas tanto de ciencia como existenciales. A Martín C. por hacer el día a día más fluido, por sus gritos a su experimento y su ayuda diaria. A Pablo por sus intentos de enseñarme a escalar y por siempre tener la mejor predisposición para escuchar tus dudas e intentar resolverlas. Y a todo el resto de la gente del LEC, los que se fueron, los que vinieron y los que volvieron, que hacen que uno se sienta como en casa.

A la gente de Tolket: Ulises, Pablo, Silvio, Darío, Laura y Antu. Gracias por siempre tener la puerta abierta.

En la facultad no puedo no agradecer a los pañoleros de los laboratorios. En especial a Ale Grecco y Pablo Dotro que siempre me acompañaron en los turnos de laboratorio, con café y facturas. Siempre me dieron una mano con mis consultas para los concursos docentes. Y por la buena onda y compañía constante.

A los no docentes de la facultad, por tantos partidos de fútbol jugados. En especial a Jaime y Cristián.

A Mariana, mi hermana, mi mejor amiga. Nos conocemos tanto y sabes lo que significas en mi vida.

Al Grupo de los Martes, Nico, Pablo, Ale y Eze. Por tantas noches de charla, PES y buena comida. Me bancaron en las buenas y en las malas, siempre estuvieron y espero que siempre estén.

A mis amigos biólogos, que son demasiados para nombrar pero ellos saben quienes son. En particular a Charly, un amigo incondicional, confidente, gran persona y científico. A Cris, compañero de gimnasio, de salidas y de charlas varias. A Toti, por su constante doble sentido y su manera de vivir la vida.

Al GAB, un grupo formado por puro azar que perduró en el tiempo y acompañó en la culminación de esta tesis. Por las noches en Banga y las jarras con pepino. Por los asados y las ferretheadas. Por tanto en tan poco tiempo. A David por ser un precursor del grupo y por las eternas charlas sobre la vida. A Mati y Mar, el tridente ofensivo del equipo. A Bauer por su oído siempre presente y sus abrazos. A Agus por su risa contagiosa. A Foke por tanto compartido en tan poco tiempo. A Andy, Gera y Franco por tanto asado, risa, charla y salidas.

Al equipo de Pelotazo a la Chechu, por todo lo ganado y jugado, pero por sobre todo por la buena onda general y el aliento constante. Por haberme dado la oportunidad de por fin jugar en un equipo con aspiraciones a campeón.

Al grupo Seinfeld, Anita, Rulos y Polo. Amigos y compañeros durante toda la carrera. Por las eternas horas de estudio, los fines de semana con asado y más de un viaje juntos. A mis amigos de la facultad, que por ser tantos no quiero nombrarlos para no dejar a nadie afuera. Saben quienes son, algunos estuvieron desde el principio y otros ya hacia el final. Gracias.

A los chicos del Fútbol de los Jueves, por ya varios años de esta tradición invaluable. Por compartir momentos dentro y fuera de la canchas. Ojala no se corte nunca.

Al grupo Pongámosle Muletas (El Loco 22), Charly, Fer, Marian y Jess. Juntos corrimos la carrera de los 7 lagos, un delirio de 100 km por paisajes increíbles en el sur de nuestro país. Gracias a ustedes pude recargar las pilas necesarias para terminar la tesis y tomarme un respiro necesario del ritmo de locura que se vive en la ciudad.

A toda la gente que me acompañó en esta última etapa de escritura. Que me banco incondicionalmente. Que me dio un respiro y me ayudó a bajar a tierra en momentos de pánico.

A todos, gracias.



## Bibliografía.

[Baillard 2006] X. Baillard, A. Gauguet, S. Bize, P. Lemonde, Ph. Laurent, A. Clairon, P. Rosenbusch, *Optics Communications*, Volume 266, Issue 2, Pages 609-613 (2006).

[Balzarotti 2007] F. Balzarotti, *Caracterización de materiales por fotorreflectancia*, Tesis de Licenciatura, FI, UBA, 2007.

[Benschop 1991] J. Benschop, G van Rosmalen, *Appl. Opt.* 30, 1179-1184 (1991).

[Bincheng 1999] L. Bincheng, J. P. Roger, L. Pottier, and D. Fournier, *J. Appl. Phys.* 86, 5314 (1999).

[Busse 1980] G. Busse, *Infrared Phys.* 20, 419 (1980).

[Celorrio 2010] R. Celorrio, E. Apiñaniz, A. Mendioroz, A. Salazar, and A. Mandelis, *J. Appl. Phys.* 107, 083519 (2010).

[Chambouleyron 1997] I. Chambouleyron, J. M. Martínez, A. C. Moretti, and M. Mulato, *Appl. Opt.* **36**, 8238-8247 (1997).

[Cossa Archiopoli 2011] U. C. Archiopoli, N. Mingolo, and O. E. Martínez, *Surf. Coat. Technol.* 205, 3087 (2011).

[Crossa Archiopoli 2010] U. C. Archiopoli, N. Mingolo, and O. E. Martínez, *J. Appl. Phys.* 107, 023520 (2010).

[Domené 2009] E. A. Domené, F. Balzarotti, A. V. Bragas, and O. E. Martínez, *Opt. Lett.* 34, 3797 (2009).

[Domené 2013] E. A. Domené and O. E. Martínez, *Rev. Sci. Instrum.* 84, 016104 (2013).

[Fan 2000] K. C. Fan, C. Y Lin and L. H. Shyu, *Meas. Sci. Technol.* 11, N1 (2000).

[Fan 2001] K. C. Fan, C. Chu, J. Mou, *Meas. Sci. Technol.* 12, 2137–2146 (2001).

[Fournier 2001] D. Fournier, *MRS Bull.* 26, 465 (2001).

[Glorieux 1999] C. Glorieux, R. Li Voti, J. Thoen, M. Bertolotti, and C. Sibilia, *J. Appl. Phys.* 85, 7059 (1999).

[Goddard 2008] L. Goddard, K. Wong, A. Garg, E. Behymer, G. Cole, and T. Bond, *Proc. IEEE LEOS Annual Meeting*, pp. 569-570 (2008).

[Kostner 2008] S. Kostner, M. J. Vellekoop, *Elektrotechnik & Informationstechnik* 125/3: 98–101 (2008).

[Landi 1999] S. M. Landi. *Efectos térmicos en microscopía túnel asistida por láser*. Tesis de Doctorado, FCEN, UBA, 1999.

[Martínez 2008] O. E. Martínez, F. Balzarotti, and N. Mingolo, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* 90, 69 (2008).

[Mingolo 2012] N. Mingolo and O. E. Martínez, *J. Appl. Phys.* 111, 123526 (2012).

[Munidasa 1998] M. Munidasa, F. Funak, and A. Mandelis, *J. Appl. Phys.* 83, 3495 (1998).

[Nordal 1979] P. E. Nordal and S. O. Kanstad, *Phys. Scr.* 20, 659 (1979).

[Novotny 2006] Lukas Novotny and Bert Hecht, *Principles of Nano-Optics*, Cambridge University Press.

[Opsal 1983] J. Opsal, A. Rosencwaig, and D. L. Willenborg, *Appl. Opt.* 22, 3169 (1983).

[Rochais 2005] D. Rochais, H. Le Houëdec, F. Enguehard, J. Jumel, and F. Lepoutre, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 38, 1498 (2005).

[Rosencwaig 1983] A. Rosencwaig, J. Opsal, and D. L. Willenborg, *Appl. Phys. Lett.* 43, 166 (1983).

[Salazar 1991] A. Salazar, A. Sánchez-Lavega, and J. Fernández, *J. Appl. Phys.* 69, 1216 (1991).

[Saleh 2007] Bahaa E. A. Saleh and Malvin Carl Teich, *Fundamentals of Photonics*, Wiley-Interscience.

[Zhang 1997] J. Zhang and L. Cai, *Meas. Sci. Technol.* 8, 546-549 (1997).